

# 超高压電子顕微鏡

( J E M - 1 0 0 0 k V )

## 講習会テキスト

### . 超高压電子顕微鏡法の基礎

1. 超高压電子顕微鏡の構造
2. 超高压電子顕微鏡の主な性能
3. 超高压電子顕微鏡の付属装置
4. 透過能と分解能
5. 高速電子の回折効果
6. 電子線照射効果
7. その他

1980年4月 第2版  
1989年4月 第3版  
2000年4月 第4版

編集：九州大学超高压電子顕微鏡室  
連絡先：福岡市東区箱崎 6-10-1

☎ 092-642-4028

e-mail: hvem@zaiko.kyushu-u.ac.jp

# 1. 超高压電子顕微鏡の構造

- 1.1 加 速 管  
3 2 段加速 (従来は 1 7 段)
- 1.2 鏡 体  
7 段レンズ構成  
サイドエントリー型
- 1.3 真 空 排 気 系  
回転ポンプ (4 台)  
油拡散ポンプ (3 台)  
コールドトラップつき
- 1.4 フイラメント  
タングステン・ヘアピン型  
または六硼化ランタン ( $L_aB_6$ ) 簡易型
- 1.5 各種絞りの大きさ  
CL : 300, 400, 600  $\mu m$  (1.0, 1.2 mm も可)  
OL : 15, 30, 70  $\mu m$   
SA : 10, 30, 70  $\mu m$   
SA<sub>2</sub> : 10, 20, 30  $\mu m$
- 1.6 フィルムサイズ : 8.2 cm × 11.8 cm

## X 線を被曝しないために

電子ビームを出したまま鏡体の左右、後方に近づかないこと。

CL(収束レンズ)絞りを抜かないこと。

1000kV 以上で許容値以上の電子流を流さないこと。

フィルムバッジの着用を忘れないこと。

## 2. 超高圧電子顕微鏡の主な性能

### 2.1 加速電圧

250 ~ 1250 kV この間250 kVステップ  
各間50 kVおよびその間を1 kVステップで可変

### 2.2 分解能

0.25 nm (点分解能)

0.14 nm (格子縞)

} いずれも1000 kVにて

### 2.3 倍率

$\times 50 \sim \times 2,000$

$\times 3,000 \sim \times 850,000$

高分解能ポールピース使用時は最高100万倍

### 2.4 照射ビーム径

2, 5, 10  $\mu\text{m}$

但し、1250 kVでは最大5  $\mu\text{m}$

最小ビーム径 0.25  $\mu\text{m}$  (1000 kV, CL絞り400  $\mu\text{m}$  にて)

最大収束角 (2 ) 1.6 mrad ( " )

### 2.5 安定度

高圧  $5 \times 10^{-6} / 3 \text{ min}$  (ドリフト)

3 V<sub>P-P</sub> (リップル)

対物レンズ  $2.5 \times 10^{-6} / \text{min}$

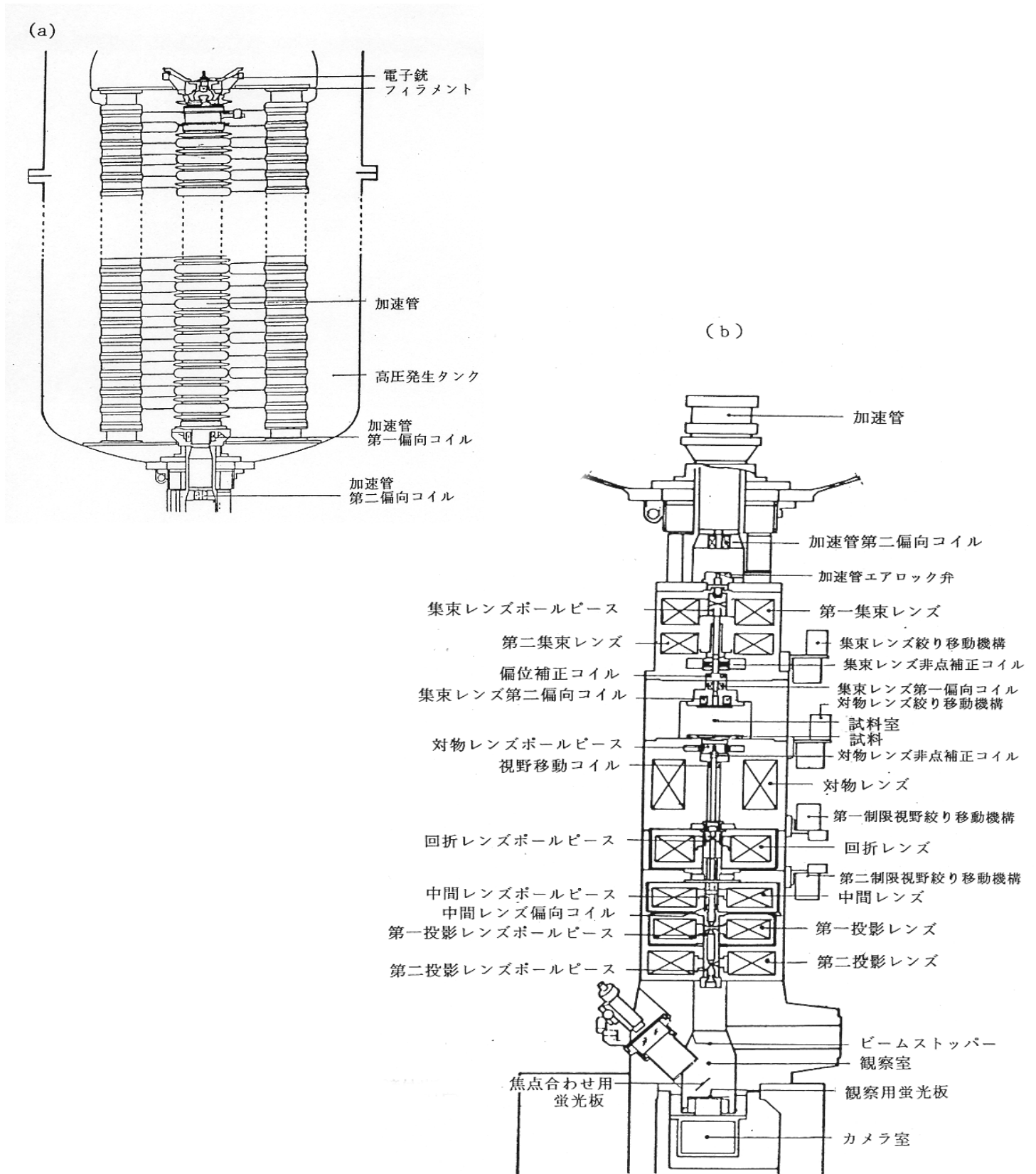


図 1 - 1 JEM - 1000 の鏡体断面 .

( a ) 高圧タンク

( b ) 鏡 筒

### 3. 超高压電子顕微鏡の付属装置

#### 3.1 イオン照射装置

加速電圧	~ 30 kV	可変
イオン電流	He <sup>+</sup> イオン	> 50 $\mu$ A / cm <sup>2</sup>
イオン種	He ~ Xe	
ビーム安定度	± 10 % 以下	

#### 3.2 TVカメラ

カメラ	検出口	1 インチ
モニタ	( 7 インチ )	
画像処理	イメージ	
ビデオ	( VHS )	

#### 3.3 サイドエントリー型試料ホルダー

回転傾斜ホルダー (SRH)	
二軸 " (STH)	
一軸傾斜低温ホルダー (SCH)	: 液体窒素 ~ 150 K
二軸傾斜極低温ホルダー	: 液体ヘリウム ~ 18 K
二軸傾斜加熱ホルダー (SHH)	~ 800 °C
一軸傾斜高温加熱ホルダー (STH)	~ 800 °C
高温引張りホルダー (SHEH)	~ 800 °C

#### 3.4 高分解能用対物レンズポールピース (UHP)

#### 3.5 磁性材料観察用ポールピース (AMG)

# 4. 透過能と分解能

## 4.1 透過能

$$I = I_0 e^{-s t} \quad (4-1)$$

$s$  = 試料の全散乱断面積

$$s = N_a = N_0 \cdot a / A$$

- $a$  : 原子の散乱断面積
- $N$  : 単位体積中の原子数
- $N_0$  : アボガドロ数
- $\rho$  : 試料の密度
- $A$  : 試料を構成する原子の原子量

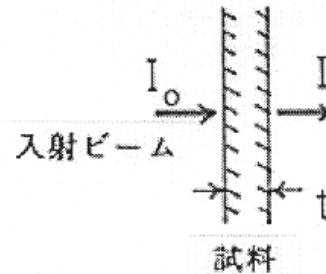


図4-1 吸収による入射波の減衰。

$a / A$ の値は加速電圧にはあまり敏感でない。

$I / I_0$ を決めるのは  $t$ の値

重い元素ほど減衰しやすい。

吸収の効果は(4-1)式の  $s$ を吸収係数  $\mu$ で置きかえて

$$I = I_0 e^{-\mu t} \quad (4-2)$$

$\mu$  : 主として非弾性散乱によるもの、加速電圧とともに減少!

$$\mu \propto v^{-2}$$

$v$  : 電子線の速度

$I / I_0$ が一定となるような透過膜厚  $t$

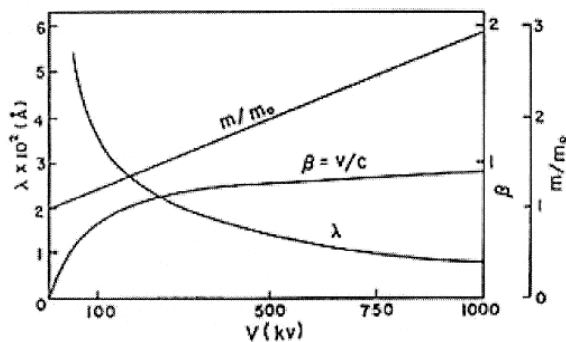
$$t \propto v^2$$


図4-2 電子線の波長 $\lambda$ , 質量 $m / m_0$ , 速度 $v / c$ の加速電圧依存性。

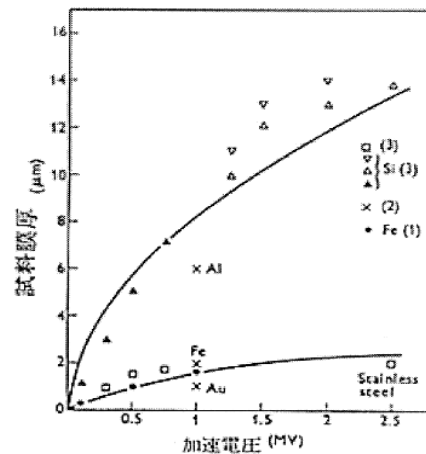


図4-3 透過試料厚さの加速電圧依存性は

$$\frac{t(1000kV)}{t(100kV)} = 3 \sim 5$$

# 5. 高速電子の回折効果

## 5.1 多波励起効果

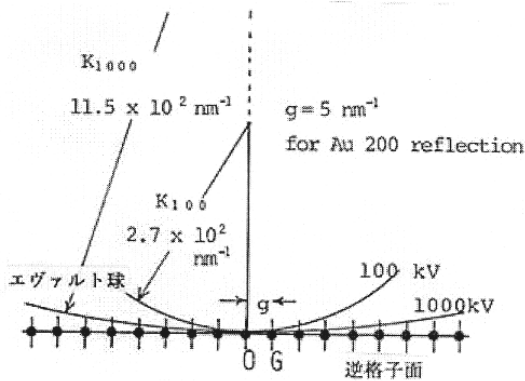


図 5 - 1

運動学的回折理論では、「加速電圧が高いほどエヴァルト球が平面に近づくため、Bragg条件からのずれ  $s$  が小さくなり、多くの波が励起される」と説明される。電子線回折では動力学的效果や吸収の効果が無視できないこと、高速電子に対しては相対論の補正が必要になること等を考慮すると上の説明は正確ではない。

## 5.2 動力学的回折

### (a) 結晶構造因子と相対理論効果

結晶構造因子  $U_g$  は

$$U_g = \frac{m}{m_0} \frac{1}{V_c} \exp(-B_g s^2) \sum_{n=1}^1 f_n^e \exp(-i \bar{g} \cdot \bar{r}_n) \quad (5-1)$$

$m_0$  : 電子の静止質量

$V_c$  : 単位胞の体積

$B_g$  : 温度因子

$$S = \frac{\sin}{\lambda} \quad (5-2)$$

$f_n^e$  : n番目の原子の原子散乱因子

$\bar{g}$  : 反射を表わす逆格子ベクトル

$\bar{r}_n$  : n番目の原子の座標

$$f_n^e = \frac{8}{h^2} \frac{z - f^x}{(4 - s)^2} \quad (5-3)$$

$z$  : 原子番号

$e$  : 電荷

$h$  : プランクの定数

$f^x$  : X線に対する原子散乱因子

結晶構造因子  $U_g$  と結晶ポテンシャル  $V(\vec{r})$  の関係は

$$V(\vec{r}) = \sum_g V_g \exp(i \vec{g} \cdot \vec{r}) \quad (5-4)$$

$$V(\vec{r}) = \sum_g V_g \exp(i \vec{g} \cdot \vec{r}) \quad (5-4)$$

$U_g$  は  $m/m_0$  を通して加速電圧  $E$  とともに増加

$$U_g(E) = \frac{m}{m_0} U_g(0) = \left(1 + \frac{eE}{m_0 c^2}\right) U_g(0) \quad (5-5)$$

$U_g(0)$  : 相対論の補正をしない構造因子

(b) 分散面と消衰距離

結晶内の入射波の波数ベクトルを  $\vec{k}$  とすると、結晶中での電子の波動関数は次の Bloch 波で表わされる。

$$b(\vec{k}, \vec{r}) = \sum_g C_g \exp\{2i(\vec{k} + \vec{g}) \cdot \vec{r}\} \quad (5-6)$$

$n$  波近似では、 $n$  個の Bloch の一次結合で表わされる。

$$\phi(\vec{r}) = \sum_{j=1}^n A^{(j)} \sum_g C_g^{(j)} \exp\{2i(\vec{k}^{(j)} + \vec{g}) \cdot \vec{r}\} \quad (5-7)$$

$A^{(j)}$  :  $j$  番目の Bloch 波の励起振幅

$A^{(j)} = C_0^{(j)}$  となるのが境界条件から導かれる。

$k^{(j)}$  の結晶表面に対する垂直成分を  $k_z^{(j)}$  とし

逆格子空間で、回折条件の関数として  $k_z^{(j)}$  をプロットしたものが分散面である。分散面は  $k_z^{(j)}$  の大きい順に  $j = 1, 2, 3, \dots$  と番号をつけて呼ばれる。(5-6) が Schrödinger 方程式を満足する条件から結晶内の波を決める基礎方程式が得られる。この式が意味ある解をもつ条件から分散面が決まる。2 波近似では、分散面は図のような双曲面になる。

2 枚の分散面の間隔の最小値  $k$  の逆数が消衰距離  $g$  である。

$$g = \frac{1}{k} = \frac{K \cos \theta_B}{U_g} = \frac{h^2}{2m_0 e V_g} \quad (5-8)$$



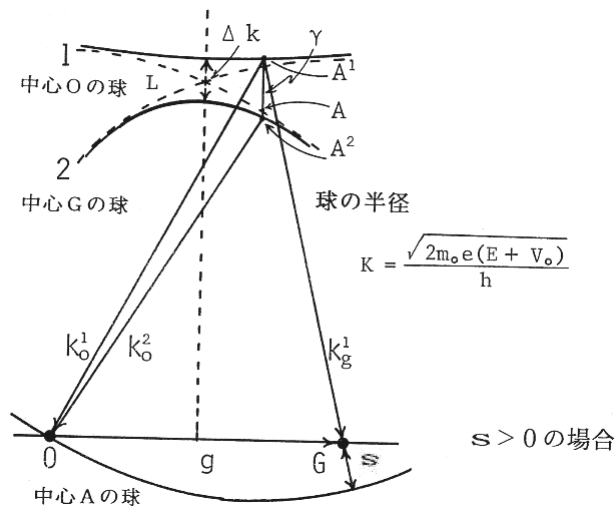


図 5 - 2 分散面とエヴァルトの球 (2 波近似)

(c) 励起誤差と回折強度

最も簡単な動力的 2 波近似によると、反射の強度は

$$I_g = \frac{1}{1 + (s/g)^2} \sin^2 \frac{\sqrt{1 + (s/g)^2}}{g} \quad (5 - 9)$$

$I_g$  は  $s$  または  $t$  とともに振動

等傾角干渉縞又は等厚干渉縞 消衰縞

$$I_g = \frac{1}{1 + (s/g)^2} = \frac{1}{1 + \left(\frac{s k}{U_g}\right)^2}$$

$$(5 - 8) \text{ より } g = \frac{s k}{U_g}$$

加速電圧が高くなって  $s$  が小さくとも一方では  $K$  が大きくなる。

$$s K = \text{一定 (図 5 - 3)}$$

ただし、入射ビームの方向が  $Z$  ベクトルに垂直で、第零次ラウエゾーンの反射に対して。  
 $I_g$  の増加は  $s$  の減少によるものではなく、相対論効果による  $U_g$  の増大によるものである。つまり加速電圧とともに  $I_g$  が増大し、多くの回折斑点が現われるようになる。

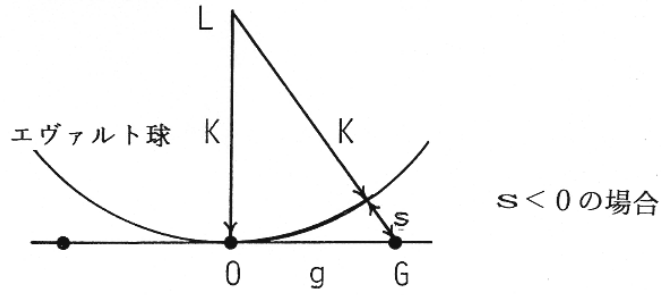


図 5 - 3 励起誤差とエヴァルトの球 .

( d ) 吸収の効果

吸収の効果は結晶ポテンシャルに虚数項をつけ加えることによって取り入れられる。

$$\begin{cases} U_0 & U_0 + i U_0 \\ U_g & U_g + i U_g \end{cases}$$

平均吸収係数を  $\mu_0 = \frac{2 U_0}{K}$

g 反射に対する吸収係数を  $\mu_g = \frac{2 U_g}{k \sqrt{1 + w^2}}$  とおく。

但し  $w = s_g$

吸収の効果を含む動学的 2 波を近似では、分散面 1 の Bloch 波がより強く吸収され、吸収係数  $\mu_0 + \mu_g$  をもつ。一方、分散面 2 の波は小さな吸収係数  $\mu_0 - \mu_g$  をもつことが示される。g 反射の強度は

$$I_g = \underbrace{\frac{-1}{2(1+w^2)} \cos \frac{2 s_g t}{\sqrt{1+w^2}} e^{-\mu_0 t}}_{\text{振動項}} + \underbrace{\frac{1}{4(1+w^2)} e^{-(\mu_0 - \mu_g) t}}_{\text{バックグラウンド項}} + \frac{1}{4(1+w^2)} e^{-(\mu_0 + \mu_g) t} \dots \dots (5 - 10)$$

吸収の効果は励起される反射の指数だけでなく、電子線の入射方位に強く依存する。異常透過やチャンネルング効果あるいは電子線照射損傷の方位依存性等も上のような吸収の効果を取入れた動学的回折理論によって説明できる。

5.3 動力学的多波効果

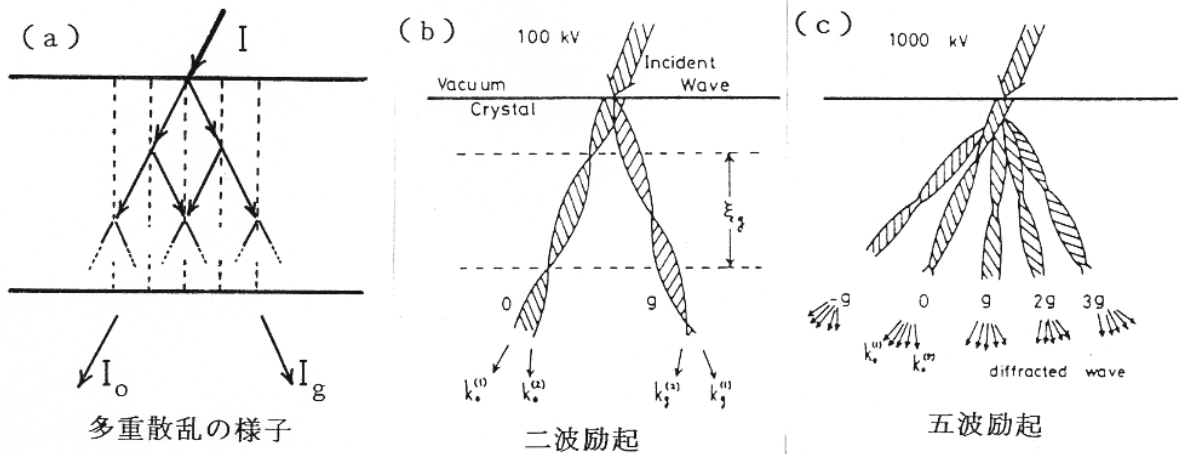


図 5 - 4 動力学的相互作用を示す模式図 .

( a ) チャンネリング効果

高速荷電粒子が結晶の低指数面もしくは、結晶軸方向に入射すると、粒子は面または軸に沿ってゆるやかなカーブを描きながら結晶内を進んで行く。これがチャンネルングである。チャンネルング効果はいろいろな形で現われる。

電 顕 像 ……ある方向から入射したときに電顕像が特に明るくなったり暗くなったりする。等傾角干渉縞に沿って非常に厚いところまで明るく見えることがある。(異常透過や異常吸収と呼ばれている)。

A L C H E M I ……ある面や軸に沿って電子波が伝わるということはその通路に存在する原子の内殻電子励起(非弾性散乱)も顕著になる。特性 X 線の放出量が入射方位に強く依存する。この特徴を分析電顕でとらえるのが A L C H E M I 法である。

チャンネルング放射 ……電子線が結晶内を軌道を描きながら進めば、その軌道の周期性に応じて光の放射(干渉性の制動放射)をおこす。すなわち小規模なチャンネルング放射も起こっている。

照 射 損 傷 ……電子線照射によって導入される点欠陥及びその 2 次欠陥の出来方が入射方位に著しく依存する。

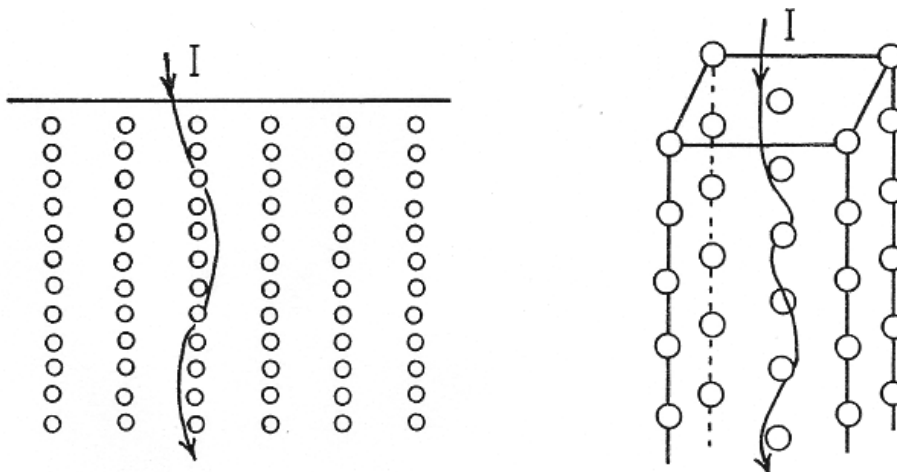


図 5 - 5 面チャンネルングと軸チャンネルングの模式図 .

( b ) 臨界電圧効果

加速電圧を変化させながら結晶の回折図形を観察していると、ある加速電圧  $V_c$  で特定の回折波の強度が極端に弱くなる現象がある。これが臨界電圧効果とよばれるものである。臨界電圧効果は菊池線にも現われる。これは動力学的多波効果および相対論効果によるもので、特定の回折波に寄与している主要な二つの分散面が加速電圧  $V_c$  の時に互いに接し（縮退をおこす）、その上下の電圧でそれらの分散面の波動関数の対称性がいれかわる現象である。

系統反射励起の場合

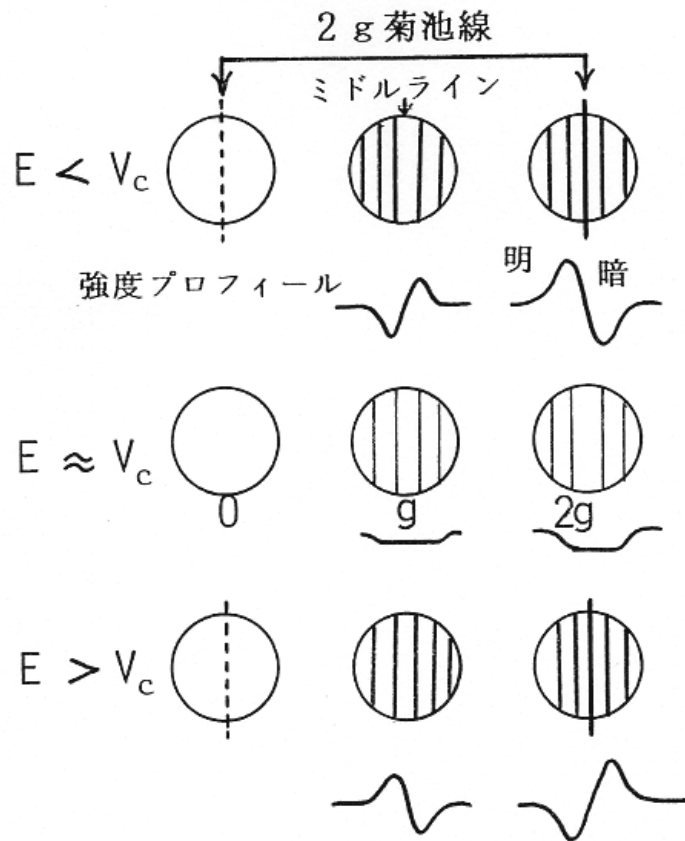


図 5 - 6 系統反射励起の臨界電圧効果 .

$2g$  反射に Bragg 条件を合わせ、 $2g$  反射および  $2g$  菊池線の強度変化に注目する（分散面 2 と 3 の接触）。 $2g$  菊池線あるいはミドルラインの非対称なコントラストの逆転に注目すると  $V_c$  を正確に測定できる。

臨界電圧は系統反射励起条件だけでなく、晶帯軸入射条件でも生じる。

( c ) 菊池線の分裂

非系統反射を励起したとき、高次の  $h$  あるいは  $h + g$  反射の菊池線が低次の・反射の菊池線と交差するところで 2 本に分裂する。このとき分裂間隔  $D$  は低次の  $g$  反射の構造因子  $U_g$  に強く依存する。（ $D$  は  $U_g$  にほぼ比例） $D$  を測定することにより  $U_g$  を求めることができる。

§ 5 - 2 で述べたように 2 波励起の場合、分散面 1 と 2 つの間隔の最小値が  $U_g$  に比例する。図 5 - 7 から類推できるように、菊池線の分裂は主要な 2 つの分散面の切口をある方向からながめているのと同様である。加速電圧が高い方が  $U_g$  が大きい。従って分裂間隔  $D$  も大きいので測定精度が向上する。

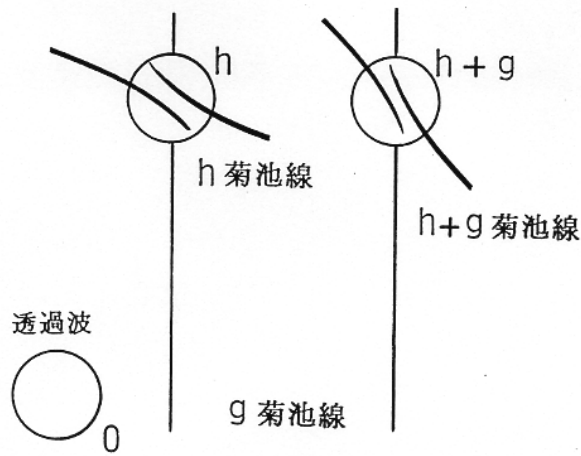
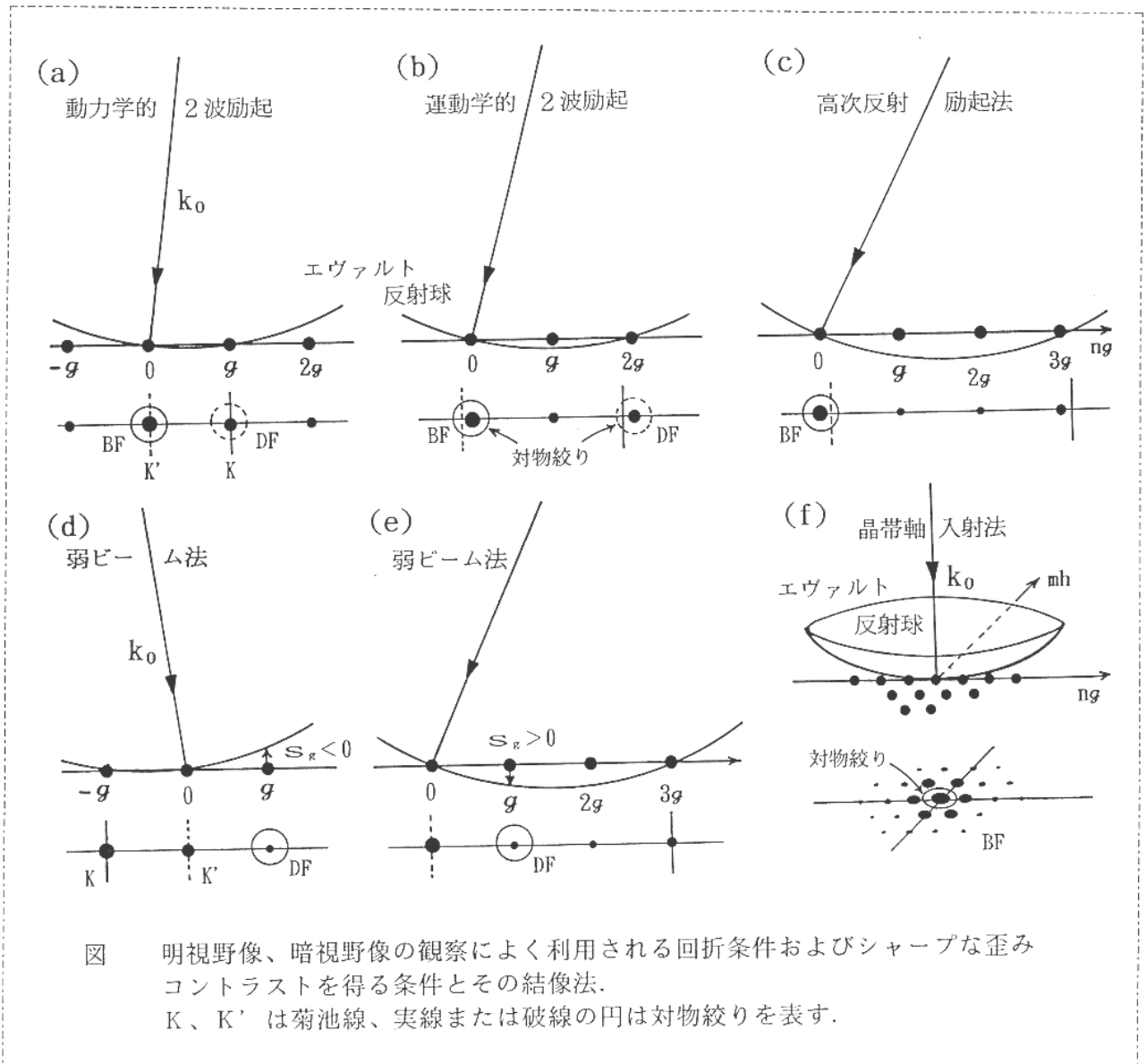
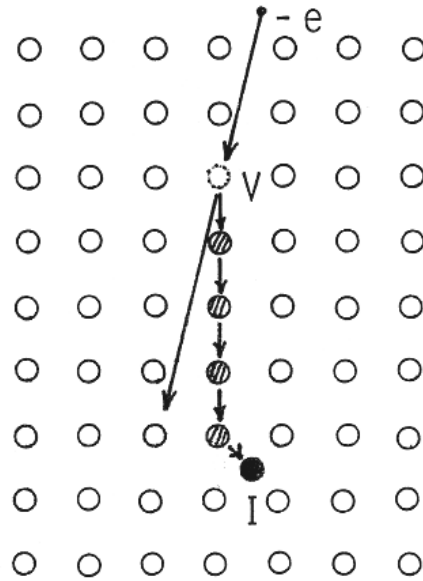


図 5 - 7 菊池線の分裂 .



# 6 . 電子線照射効果

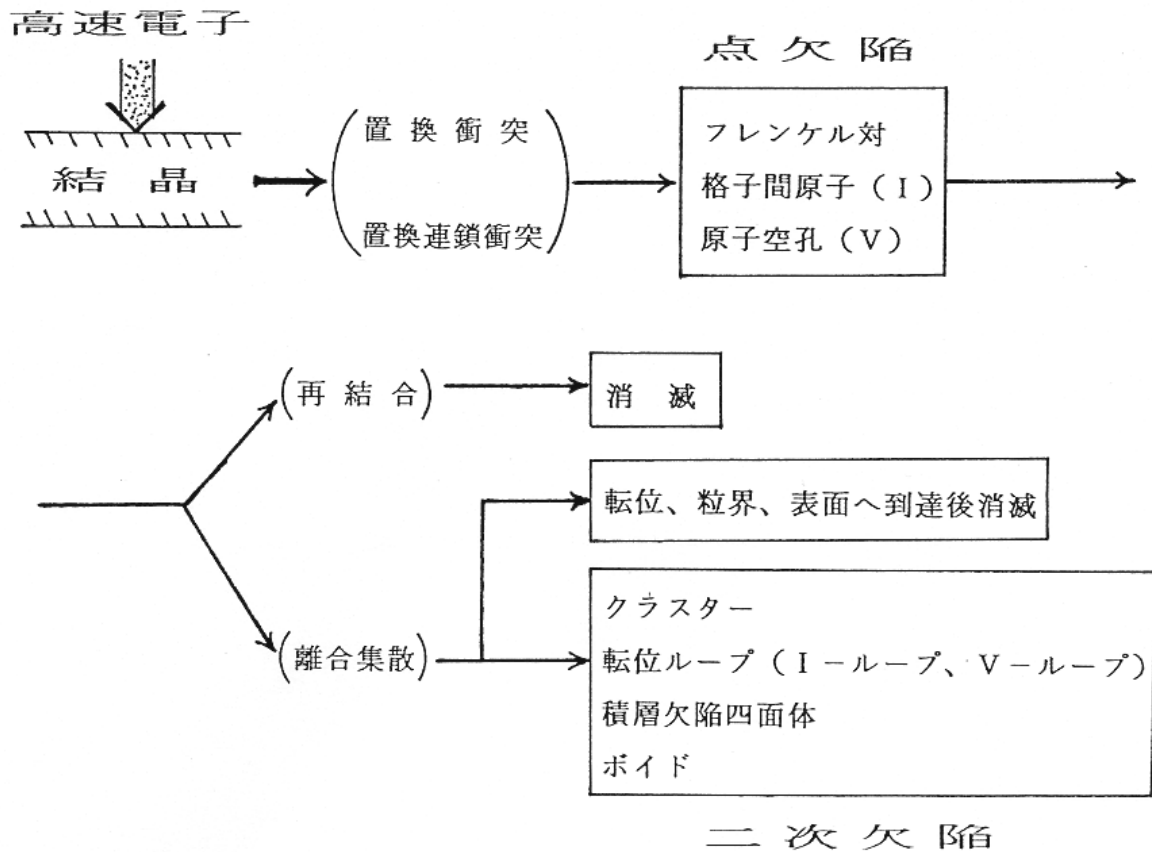
## 6 . 1 照射欠陥



玉つき現象と原子のはじき出し

図 6 - 1 電子線照射によるフレンケル対の発生 .

結晶に入射する電子線のエネルギーがある値以上になると、弾性散乱による原子の置換衝突、置換連鎖衝突が起こり格子間原子 ( I ) と空孔 ( V ) からなるフレンケル対が形成される。



## 6.2 原子のはじき出しが起こる電圧

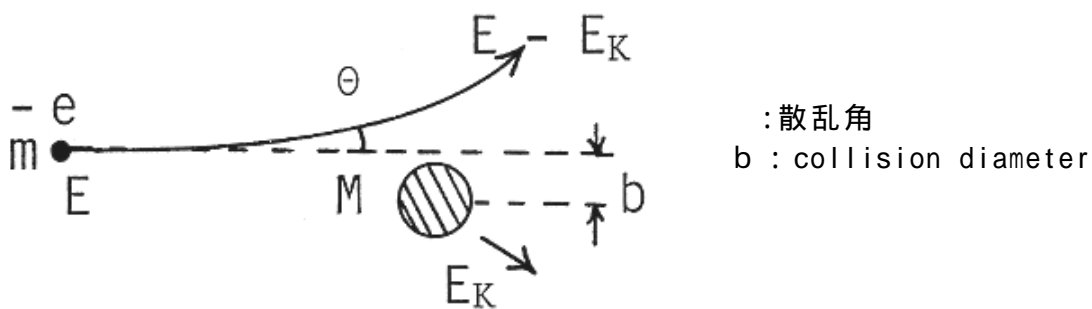


図 6 - 2 原子による電子の散乱 .

質量  $m$  の電子が質量  $M$  の重い原子に高速で衝突する場合を考える。  $M$  に与えられる運動エネルギーの最大値  $E_k (max)$  は運動量保存則より

$$E_k(max) = \frac{2E(E + 2mc^2)}{Mc^2}$$

$c$  : 光速

正面衝突でない時は 
$$E_k = E_k(max) \sin^2 \frac{\theta}{2}$$

微分散乱断面積 
$$d = \frac{1}{4} b^2 E_k(max) \frac{dE_k}{E_k^2}$$

$E_k$  があるしきい値  $E_d$  をこえると原子のはじき出しがおこる。多くの金属原子は  $1250 \text{ kV}$  以下の電圧ではじき出される。  $E_d$  の値は照射される結晶及びその方位によって異なる。

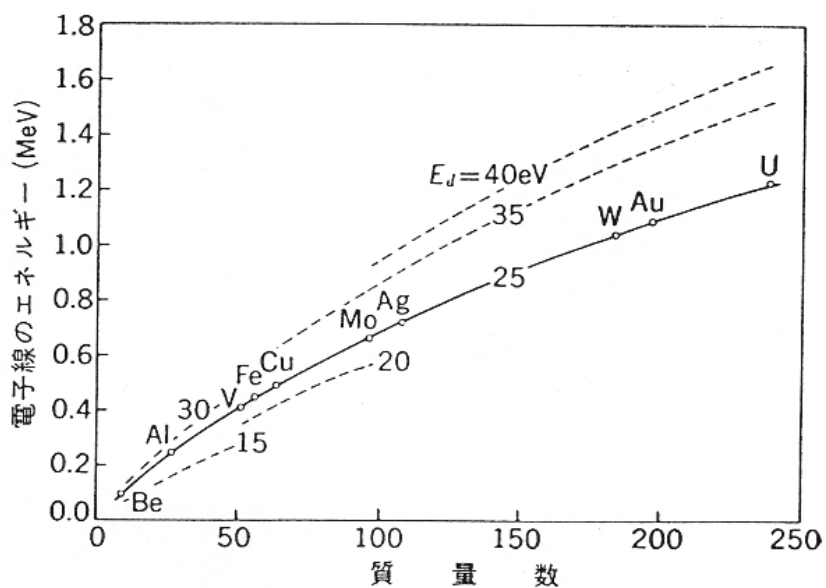


図 6 - 3 原子のはじき出しに必要な加速電圧 (白石による<sup>(1)</sup>)

### 6.3 電子線照射の特徴

#### 照射欠陥を支配する要因（試料以外の要因）

電子線のエネルギー	電子線の照射密度	電子線の照射時間
試料温度	電子線の入射方位	

前述したように、チャンネルング効果が照射欠陥のでき方を大きく支配する。一般には、Bragg反射の指数が高くなるほど2次欠陥のでき方は少なくなり、また回折条件からずれるほど欠陥量は減少する。

#### イオン照射や中性子照射との違い

- 照射密度が高いので短時間で照射損傷をひきおこす。
- カスケードは顕著でない。
- 照射条件（上記要因）を容易に制御できる。
- 欠陥の離合集散過程を直接観察できる。

表6-1 原子のはじき出し損傷率

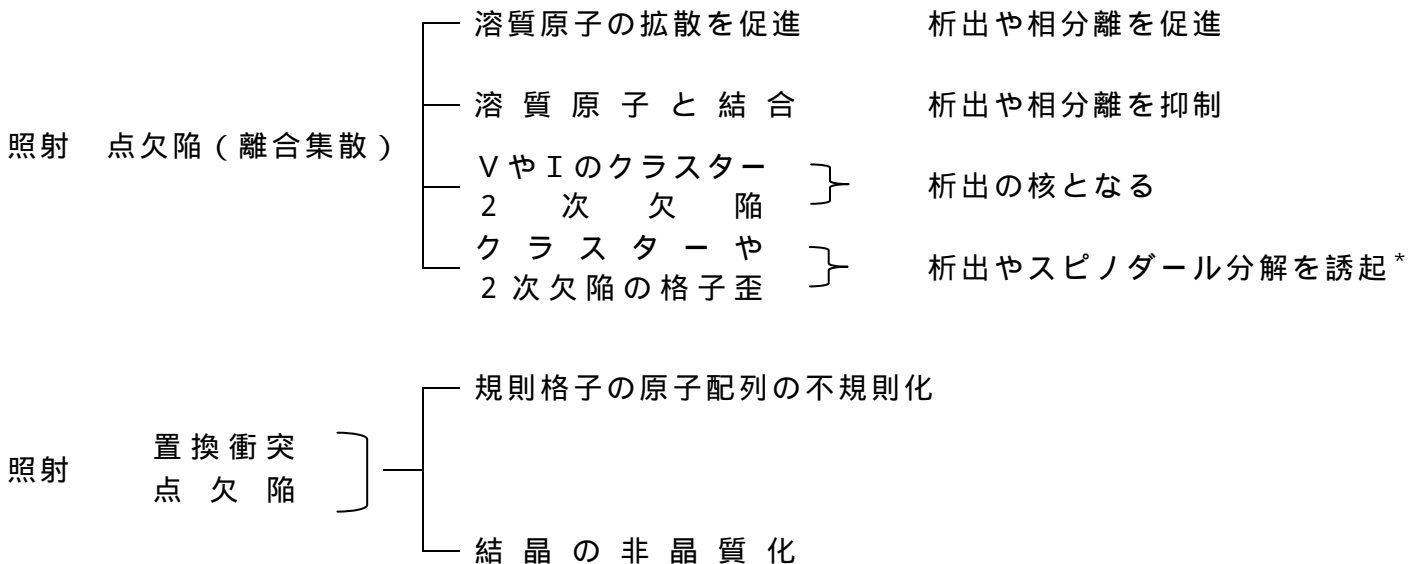
放射線	線束 ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$ )	損傷率 ( $\text{dpa}\cdot\text{sec}^{-1}$ )	率 ( $\text{dpa}\cdot\text{yr}^{-1}$ )
中性子			
研究炉	$10^{13}$	$10^{-8}$	1
材料試験炉	$10^{14}$	$10^{-7}$	10
高速増殖炉	$10^{15}$	$10^{-6}$	50
核融合炉	$10^{13}$	$10^{-7}$	10
重イオン (dpa·hr <sup>-1</sup> )			
加速器	$10^{12}$	$10^{-2}$	30
電子線			
超高圧電顕	$10^{19}$	$10^{-3}$	5

dpa (displacements per atom): 照射される材料の1原子当りのはじき出し数

(ステンレス鋼の場合, 白石による<sup>(1)</sup>)

### 6.4 照射誘起相変態

電子線照射効果は析出や相分離を抑制あるいは促進するもの、それらを誘起するものがある。





\* : 平衡状態図では固溶体あるいは単一相であるような組成あるいは温度領域でも、照射によって析出やスピノーダル分解がひきおこされる。

結晶(特にイオン結晶)によっては非弾性散乱によっても欠陥が導入されたり非晶質化がおこることがある。

## 7 . その他

### 7.1 その場観察 in situ observation

イオン照射  
加 熱  
冷 却  
変 形

### 7.2 非弾散乱の減少

イオン化、温度上昇等による試料損傷の軽減  
色収差の減少  
蛍光板上の像がみにくい(電子線が蛍光物質も良く透過するので)

### 7.3 散乱角の減少

解像度の高い暗視野像(収差による像のボケが少ない)  
格子欠陥の高分解能観察(高次反射励起法)

### 7.4 振幅コントラストの減少

# 超高压電子顕微鏡 (HVEM) の特徴

## 1. 電子エネルギー (速度) の増大

### 透過能の増大

- ( ) 厚い資料の観察が可能・・・格子欠陥、相変態などの観察に有利
- ( ) 像コントラストの低下
- ( ) 蛍光板上の像が見えにくい

### 非弾性散乱の減少

- ( ) バックグラウンド強度の低下・・・像質の向上
- ( ) 温度上昇やイオン化による試料損傷の軽減
- ( ) 色収差の減少・・・解像度の向上

### 弾性置換衝突による照射損傷の増大

- ( ) 格子欠陥 (点欠陥、2次欠陥) の生成
- ( ) 原子配列 (規則格子、イオン結晶) の不規則化
- ( ) 相変態の促進、誘起

## 2. 電子線の波長の現象

### 散乱角の減少

- ( ) 分解能の向上
- ( ) 位相コントラストの増大
- ( ) 球面収差による像のボケ減少  
暗視野像の像質向上  
制限視野回折におけるまわりこみの誤差減少

### 動力的多波効果の増大

- ( ) 像形成機構の複雑化・・・像解釈のむずかしさ
- ( ) 動力的回折効果・・・臨界電圧効果、菊池線の分裂等
- ( ) 電子線チャネリング

## 参考文献

- (1) 白石健介：電子顕微鏡，VOL.12，No.1(1997) PP.15-20