

THE HITACHI SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS

 SUMMER 1986
VOL.29 NO.2

目次

ナノテクノロジー特集

巻頭言

 ハイテク分野における電子顕微鏡
の役割……………永谷 隆… 1

報文

 新しく開発した300kV超高分解能
電子顕微鏡による格子欠陥の二、
三の観察例……………
……………藤田広志 角田直人… 4
多孔質ガラスの骨格構造の電子顕
微鏡による観察……………山田直子
植村 功 松淵 勇 大隅正子… 9
マウスの受精の過程—SEM観察—
……………近藤俊三… 13

解説

 H-9000形日立高分解能電子顕微鏡
……………窪添守起 佐藤 恒… 18

 IMA-3形日立イオンマイクロア
ナライザ用Csイオン源……………
泉 栄一 有馬義雄 岩本 寛
志知広康 田村一二三…………… 22

 SEM用日立イメージプロセッサ
EP-1050……………
……………大野輝昭 片桐信二郎… 27

トピックス

 IMA-3形日立イオンマイクロア
ナライザ用一次イオン分離装置… 3
F-1200/F-1300形日立分光蛍光
光度計…………… 17

 L-8500形日立高速アミノ酸分析計
…………… 17

 REICHERT-NISSEI ULTRACUT N
ウルトラミクロトーム販売開始… 21

第24回分析機器展…………… 8

 第24回プラズマ分光分析/第50回
原子スペクトル分析研究懇談会
/講演会開かる…………… 26

 第5回生命・細胞・電子顕微鏡講
演会開かる…………… 26

ナノテクノロジー特集

巻頭言

ハイテク分野における電子顕微鏡の役割

—すすむナノテクノロジーへの挑戦—

Recent Electron Microscopic Contribution in The Field of High Technology.

—Challenge to Nano-Technologies—

永谷 隆*

(昭和61年3月25日受理)

電子顕微鏡がいろいろな分野における物質の微細構造解明に欠くことのできない装置であることは既に広く認められているが、最近のマイクロエレクトロニクスの進歩、新素材開発の推進、バイオテクノロジーへの新たな展開といった、いわゆるハイテク分野の拡大につれて、基礎研究やR/Dにおける原子レベルの観察とナノ領域の元素分析はもとより、プロセス制御、品質管理面での検査、評価といった分野からも電子顕微鏡に対する期待はますます大きくなっている。

電子顕微鏡がRuskaらによって最初に開発されてから既に半世紀を経過した。当初電顕といえば、薄膜試料だけを対象とする透過形電顕(TEM)が主流であったが、20年前に表面形態観察を主体とする走査形電顕(SEM)が製品化され、電顕の応用が飛躍的に増大した。一方でX線微小部分分析装置(EPMA)の手法が確立し、その方式にSi検出器によるエネルギー分散形X線分光(EDX)が開発されて以来、早速TEMにも取り入れられて、いわゆる分析電顕(AEM)が電顕応用の主要な部分を占めるようになった。また、物質の結晶構造決定に欠かすことのできない電子回折法は、早くからTEMの主要な機能として不可分の関係にあり、SEMにおいても電子チャネリング回折(ECP)応用した選択領域チャネリング回折(SACP)が次第に応用範囲を広げている。

試料を透過した非弾性散乱電子のエネルギー損失量を測定して元素同定したり、分子構造を知る電子エネルギー損失分光(EELS)もTEMや走査透過電顕(STEM)に取り入れられて、分析電顕の機能をより広げつつある。

したがって、電顕といえば単にTEMだけを指し、分析電顕といえばTEM+EDXを考えていた時代は既に古くなり、現在では電顕といえば上記の多彩な電顕法と理解し、更に分析電顕といえば、上記の電顕ですべて可能な電顕の観察と各種分析法を総括した物質のトータルキャラクタリゼーションと理解しなければならない。それらの関係を著者なりに図示してみると図1のようになる。

電顕の最近の発展には更に、

(1) マイクロプロセッサ制御による電顕操作性の飛躍的な向上

*日立製作所 那珂工場 副技師長 理博

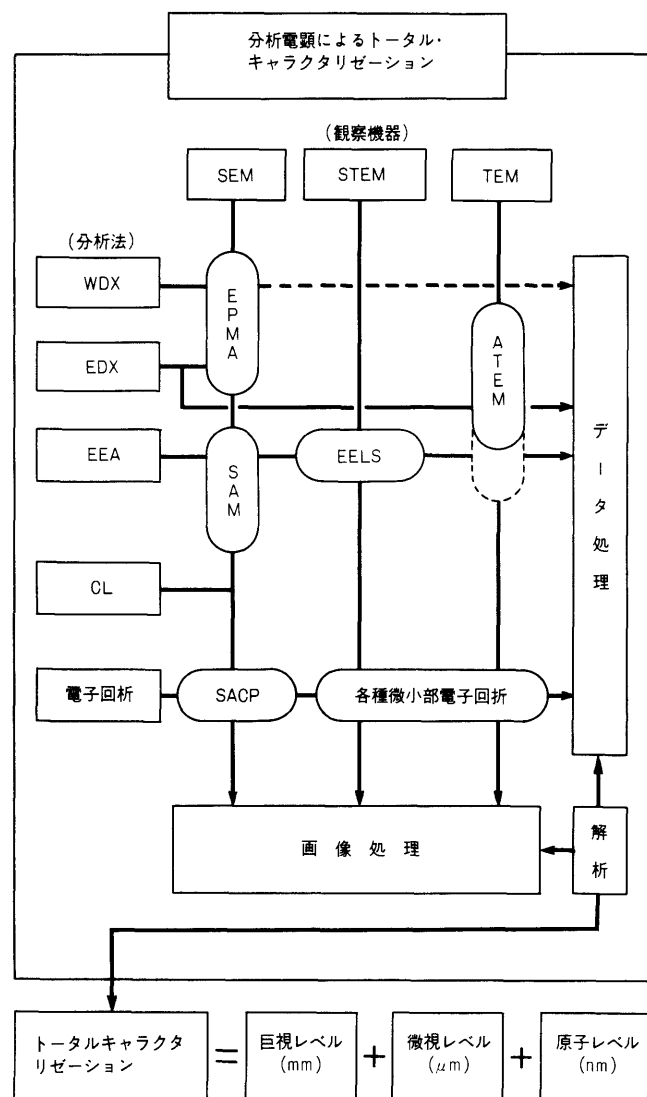


図1 分析電顕によるトータルキャラクタリゼーション

- (2) テレビ技術と画像処理技術の積極的な取込みによる電顕機能の拡大
- (3) イオン研磨等による試料薄膜化技術の普及
- (4) 加熱・冷却などin situに行なう各種電顕付属装置の開発と応用、等がその支えとなっている。

以上は、主として一般に広く使用され得る電顕法を対象としたものであるが、研究室的な範囲まで電顕の役割を広げてみると、たとえば、電界放射(電子・イオン)顕微鏡(FEM or FIM)、原子プローブ (Atom probe)、電子線ホログラフィー、高速・中速・低速電子線回折 (RHEED, MEED, LEED)、走査トンネル顕微鏡 (STM)、TEM分解能に匹敵する超高分解能走査電顕、超高圧電顕 (HVEM)、熱波顕微鏡 (Thermal EM)、走査オージェ分析装置 (SAM) 等々があり、これらはいずれも数ある表面分析装置の主要な部分を占めているので、電顕も広い意味では、表面分析法の一つとして包含されることになる。

私ども日立製作所は、長い電顕研究と製品開発を背景として、最近のハイテク分野に貢献すべく“ミクロ領域からナノ領域へ”の挑戦を続けている。実際の成果はそのほとんどが、私どもの電顕ユーザーの応用研究から出されたものではあるが、それらの内容の一部は“すすむナノテクノロジーへの挑戦”のタイトルのもとに、毎年の日本電顕学会の展示会にパネルとしてその要約を発表している。次表を御覧頂ければ、私どもが考えるハイテク分野における電顕の役割がおおよそ分かり頂けるものと思う。これらは逐時テクニカル・データとしてまとめ公表しているので、詳細はそれらを御参照頂きたい。

ハイテク分野、特に新材料開発に対する電顕の貢献度がますます高まっていくであろうことは、最近(社)日本分析機器工業会がまとめた「次世代産業の技術開発に必要とされる新しい分析方法に関する調査研究」の中にも、しばしば指摘されていることでもよく分かる。今後、各方面で新材料の開発が進む中で、電顕による評価が決定的な場面に遭遇する例がますます数多くなるものと予想される。

「すすむナノテクノロジーへの挑戦」

(その1 昭58年度)

サブテーマ	内 容	ポ イ ン ト
1. 原子レベルに挑む	超高分解能(TEM)	1 Å (0.1nm) を切る0.88 Å (0.088nm) の分解能の実証とニューセラミックスのストラクチャ像の観察
2. 量子論に挑む	電子線ホログラフィー	高干渉電子線を用いた電子線ホログラフィーによるミクロな磁力線の直接観察
3. Nanoストラクチャに挑む	FE電子銃	電界放射形分析電子顕微鏡による電子線干渉性向上($\Delta E \sim 1 \text{ eV}$)と超高分解能化(STEM/SEM像 $\sim 1 \text{ nm}$)
4. Nanoアナリシスに挑む	電子線エネルギーアナライザ	電子線エネルギー損失(EELS)による軽元素分析(マッピング像の画像処理)
5. 超微細加工観察に挑む	超低加速観察(半導体)	Fine Step 超低加速電圧(0.5~2kV)による無蒸着高分解能観察
6. より自然な姿に挑む	クライオ技法	寒天ゲルなど含水試料の高分解能クライオ技法(10,000~30,000倍)と生物試料の液体ヘリウム温度で急速凍結の置換固定法による超薄切片の観察
7. 立体構造の解明に挑む	高加速電圧によるステレオ観察(準超薄切片)	準超薄切片(厚さ0.5~1μm)による細胞の立体構築……ステレオ観察法

(その2 昭59年度)

サブテーマ	内 容	ポ イ ン ト
1. 原子レベルに挑む	超高分解能 (TEM)	200kV商用電顕で初の0.72 Å (0.072nm) の分解能を実証
2. 未来素材に挑む	超格子半導体素子	GaAs-GaAlAs 超格子素子の各層の界面の原子配列状態の観察
3. ナノストラクチャに挑む	新素材	セラミックスの強靱性、機械的強度のメカニズムの解明にクラックの挙動を原子レベルでとらえる。
4. より自然な姿に挑む	超低加速電圧観察	無蒸着による VLSI の最表面の微細構造の観察
5. 生命のメカニズムに挑む	心筋の微細構造	細胞境界の特殊な接合構造の観察
6. 立体構造の解明に挑む	立体観察	厚い試料を超高圧下で観察し、深さ情報をとらえた、細胞の立体観察。
7. 立体構造の解明に挑む	画像処理	ストラクチャ像の画像処理による構造解析。

(その3 昭60年度)

サブテーマ	内 容	ポ イ ン ト
1. 原子レベルに挑む	超高分解能 (TEM)	300kV電顕での高分解能格子像観察
2. ナノフィールド表面形態に挑む	超高分解能 (SEM)	5 ÅFEプローブによる結晶面原子レベルステップの観察
3. 未来デバイスに挑む	断面観察 TEM	200kV電顕による高密度垂直磁気記録膜の観察
4. 超高速度回路解析に挑む	低加速ストロボ SEM	高速集積回路素子メモリのスイッチング特性測定
5. 極表面分析に挑む	低加速SEM	VLSI の極表面高忠実度観察と層構造元素分析
6. ナノプローブ分析に挑む	極小領域分析電顕	FE電子銃TEMによる極小領域の分析
7. 新素材の微細構造に挑む	in situ イオン打込み TEM	超高圧電顕における in situ イオン打込みと観察 (北大)
8. ナノエリア in situ 処理に挑む	in situ イオンミリング TEM	VLSI (半導体レーザ) の in situ 薄膜化観察

Topics

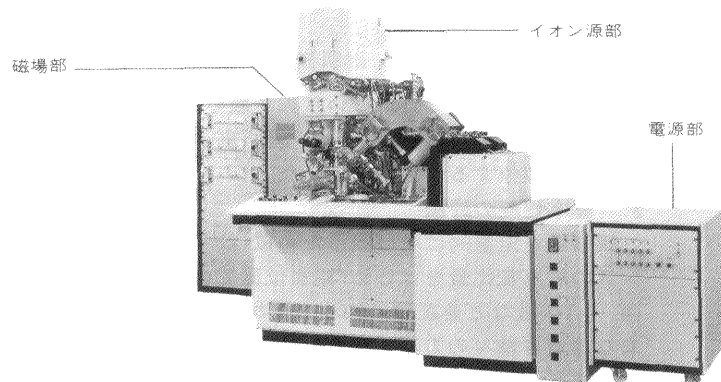
IMA-3形日立イオン マイクロアナライザ用 一次イオン分離装置

IMA-3は、半導体材料および各種ハイテク分野における新素材を対象とした表面分析装置です。分析試料および分析対象元素は多岐にわたり種々の分析技法が開発されています。B, Al, Ga, Inなど電気陽性元素の高感度分析には改良形 O_2^+ イオン源を、S, As, Sb, Seなど電気陰性元素の高感度分析

には Cs^+ イオン源を用い分析の多種、多様化に対応しています。更に2種のイオン源による測定を確実かつ迅速にするため、一次イオン分離装置を開発しました。一次イオン分離装置は、IMA-3の収束部の上に搭載した磁場部、イオン源部、磁場制御用の電源部から構成され、イオン源は、 O_2^+ イオン源と Cs^+ イオン源を同時に装着し、磁場の極性および強度の切替えにより一次イオン種をワンタッチで選択します。

■特 長

- (1) 磁場切替えにより O^- , O^+ , O_2^+ , Na^+ , Ar^+ , Cs^+ などの選択を迅速に行えます。
- (2) 一次イオン中に含まれる不純物イオンを除去し、高純なイオンを照射できる。
- (3) 一次イオン中に含まれる中性粒子を除去できます。



報 文

新しく開発した300kV超高分解能電子顕微鏡による格子欠陥の二、三の観察例

Observation of Lattice Defects with a New UHR 300kV TEM

藤田 広志* 角田 直人**

(昭和61年4月30日受理)

1. はじめに

電子顕微鏡の高圧化は試料の観察を容易にしたり、像の分解能を良くするうえで有利であるが、加速電圧の安定度、偏向コイルやレンズ等の電源の安定度、高性能対物ポールピースの製作などそれに伴う種々の問題が生じる。超高分解能電子顕微鏡の加速電圧は、これらの問題に対する製作技術を総合的に検討して設定されるべきである。

阪大・超高压電子顕微鏡センターと日立製作所那珂工場は、共同して現時点および近未来の電子顕微鏡ユーザーの要求とメーカーの実現可能な製作技術を詳細に検討し、加速電圧を300kVに設定した新しい超高分解能電子顕微鏡(H-9000)を開発した¹⁾。そこでこの電子顕微鏡の特徴や性能向上のための新しい試みと、電子顕微鏡の基本的性能の測定結果を紹介するとともに、この電子顕微鏡を用いた格子欠陥の観察例のいくつかを紹介する。

2. 300kV電子顕微鏡の概要¹⁾

新しい電顕を設計するにあたり次のような項目を主要な設計目標とした。

- (1) 従来の3000kV電顕の経験を生かして、加速管内放電ならびに変動電磁場に強い信頼のおける最高電圧であること。
- (2) 装置は小型、軽量で、かつ操作性の良いこと。
- (3) 鏡体内は高真空でかつ清浄な真空にすること。
- (4) 球面収差係数の小さい高性能ポールピースであること。
- (5) あらゆる振動に耐え得ること。

これらの項目を実現するために、設計段階でいくつかの新しい技術的試みを取り入れた。加速管は小型化、超高真空化するためにベッキング可能なセラミックス絶縁とし、電圧は10段加速で段間45kVが印加できるようにした。ハウジングとの絶縁には2 kg/cm²のSF₆ガスを用い、加速管内は排気能力60ℓ/secのイオンポンプで排気して真空の質を向上させた。高電圧の安定印加と高電圧電源小型化のために高圧ケーブルは抵抗ケーブルを使用している。

真空の質の向上を計るため、加速管内は60ℓ/secのイオンポンプ、鏡体内は340ℓ/secの磁気浮上形ターボ分子ポンプ、カメラ室は280ℓ/secのエドワーズ社製油拡散ポンプ(使用油はSantovac 5)で排気するとともに、試料の交換はターボ分子ポンプで試料室を予備排気してから試料を鏡体内に挿入するシーケンスにした。フィルム交換時における

真空度については、予備排気を油拡散ポンプで行ない、フィルムに吸着した水分を十分除去し得るようにした。さらに、フィルムを挿入したカメラ室を油拡散ポンプで十分排気した後に鏡体と真空をつなぐ工夫をし、フィルム交換時に鏡体の真空の質が低下することを防止した。

H-800形で開発されたステンレス製ライナーチューブを鏡体に採用するとともに、コンデンサー絞り、対物絞り、制限視野絞り等の可動部をベローシールしてできるだけオーリングシールの箇所を減少させ、鏡体内を良質な真空に保持するようにした。

他の電顕との試料の互換性および高倍率でスムーズに試料が傾斜できる傾斜機構を目指すために、試料ステージはトップエントリー方式でその試料寸法はφ3mmとした。この条件で超高分解能を得るため対物レンズは銅条コイルを採用し、レンズを最高1万4,000AT、IN/√E~23まで励磁できるようにした。その結果、300kVで球面収差係数0.9 mm, 色収差係数1.5mmの対物レンズが実現できた。

鏡体はニュマクッションPC-400(空気ばね)で支持して床からの振動をほぼ完全に除去した。また音や風による鏡体の振動の減衰を効果的にするために鏡体各所に防震材料を用いた。

照射系は3段レンズを採用し、φ50nmの領域から収束電子線回折が得られるようになった。結像系は5段レンズ構成で、全倍率範囲(1K~1,000K)で試料、像、電子線回折像の方向が一致している。これらの各レンズ電流は通常CPUを通して制御されるが、マニュアル制御も可能である。レンズ電流をマニュアルで制御すると最大200万倍までの倍率が実現できる。

電顕の操作はH-500形で採用されたCPU制御の思想を受けつぎ、各操作の状況は操作盤上に置かれたディスプレイに一括して表示される。今回はさらにレンズ電源のマニュアル制御の状況もディスプレイ表示できるように改良したので、プログラム制御とマニュアル制御を容易に切換えられる。

このように、種々の新しい試みを取り入れた結果、極めて操作性のよい高性能電顕を小型化(高さ2.7m, 重さ1.6トン)して製作することに成功した。

3. 基本性能の評価

観察像を定量的に取り扱うためには、加速電圧や対物レンズの焦点変化量をはじめ、観察位置でのレンズの収差(球面、色)係数などを正確に知る必要がある。これら電顕に固有な諸量を種々の方法で測定した。

加速電圧は菊池線を利用する方法^{2),3)}で測定した。球面収

* 大阪大学 超高压電顕センター長 工学部 教授 工博

**大阪大学 工学部 工博

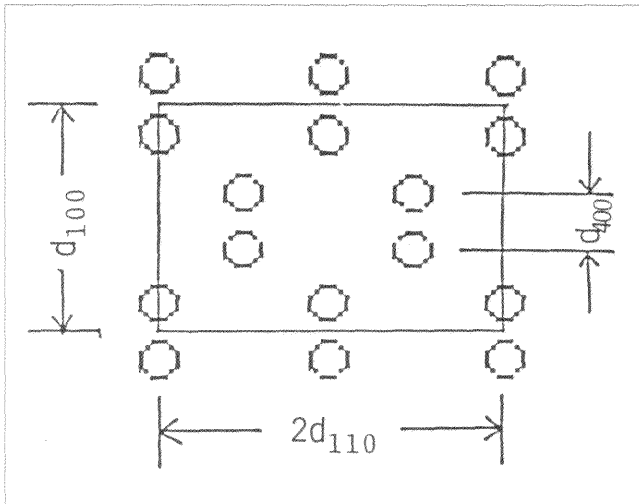


図1 ダイヤモンド結晶格子の(110)面投影図

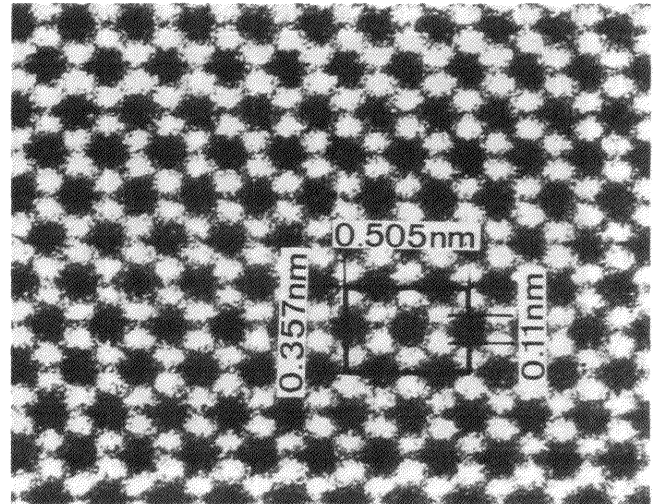


図2 ダイヤモンドの(110)面結晶格子像

差や色収差係数の測定は、それぞれ入射電子線の傾斜角と像の移動量や加速電圧の変化量とレンズの焦点の変化量で測定する方法で行なった。その結果、300kVで球面収差係数は0.9mm、色収差係数は1.5mmであった。

分解能はカーボンの非晶質像を光回折して評価した。その結果、300kVで0.18nmの点分解能が実現されていた。一方、格子縞の分解能テストは金の格子縞観察で行ない、 $\{200\}$ 面のハーフブリッジを明瞭に観察した。さらに結晶格子像を観察する条件での分解能は、ダイヤモンド型格子の $\langle 110 \rangle$ 方向からの格子像を観察することにより評価した。

ダイヤモンド型結晶格子の(110)面原子投影図を図1に、ダイヤモンド(格子定数 $a=0.3568\text{nm}$)の観察像を図2に示した。 $2d_{110}$ 、 d_{100} 、 d_{400} の値はそれぞれ0.505nm、0.357nm、0.089nmである。観察像中のそれぞれに対応する面間隔を測定すると、 $\{100\}$ 面と $\{110\}$ 面間隔は格子定数からの計算値と一致したが、 $\{400\}$ 面間隔は0.089nmより少し大きい0.11nmという値しか得られなかった。これは $\{400\}$ 反射の格子縞が分解されたのではなく、禁制反射の $\{200\}$ 反射が二重反射で出現しそのハーフブリッジとして分解されているためと考えられる⁴⁾。

しかし、300kV超高分解能電顕を用いた観察で0.1nm程度の分解能を、格子像の観察条件(100万倍の倍率)で実現できることが判った。

4. 高分解能像の観察例

4.1 ダイヤモンド中の窒素薄板

大部分の天然ダイヤモンド中には、多数の窒素薄板が析出している^{5),6)}。この薄板は光吸収やX線回折の結果から、図3に示したように窒素原子が二原子層だけ $\{100\}$ 面上に析出したものであると考えられている⁷⁾。その形状は $\langle 110 \rangle$ 方向にラス状にのびたものである⁸⁾。

図4はダイヤモンド中の窒素薄板を $[110]$ 方向から観察した格子像である。写真中に示した0.206nm、0.178nm、0.126nmはそれぞれ $(\bar{1}11)$ 、 (002) 、 (220) 面間隔を表わす。この方向から試料を観察するといくつかの薄板は試料膜面に垂直な (001) 面に存在するから、この方向からの

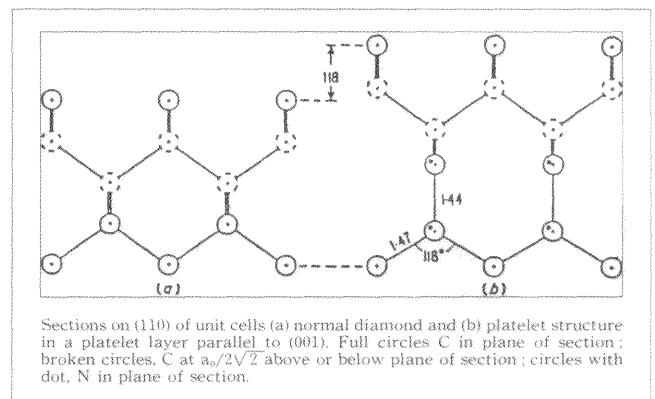


図3 窒素薄板の原子模型

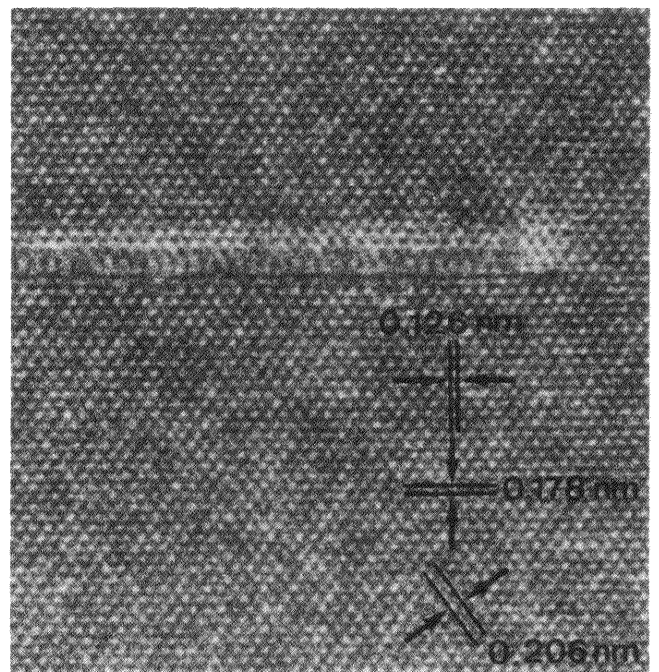


図4 ダイヤモンド中の窒素薄板

格子像で提案されている薄板模型の妥当性が検討できる⁹⁾。今回の我々の観察結果は、図3に示された模型を支持しているようにみえる。

4.2 β -FeSi₂中の成長面欠陥

FeSi₂には高温で安定な α 相(正方晶)と低温で安定な β 相(斜方晶)があり、986℃で $\epsilon + \alpha \rightarrow \beta$ 反応か $\alpha \rightarrow \beta + \text{Si}$ 反応により α 相から β 相に変態する。その変態時に β 相内に成長欠陥が多数導入される¹⁰⁾。我々がこの成長欠陥を詳細に調べた結果、成長欠陥は面欠陥で(100)面上にあり、原子のずれ方向は[011]方向であることが明らかになった¹¹⁾。この成長面欠陥の原子模型を検討するために、欠陥を含む領域の格子像を観察した。その結果の一例が図5である。[021]方向から試料を観察すると、(100)面は電子線に平行であるから成長面欠陥に関する原子模型の情報が得られるはずである。

写真中の矢印の方向に成長欠陥が垂直に入っている。格子像では(400)面間隔0.247nmが観察されているので、欠陥の構造をこの程度の分解能で検討できることになる。計算像との比較から成長面欠陥はa軸方向にある単位格子内の10原子層のうち、第5層と第6層の間で[011]の方向に1/2[011]だけ原子がずれたものであると結論できた。

4.3 NiAl規則合金の格子像^{12),13)}

300kV電頭は0.1nm程度を容易に分解できるので、規則

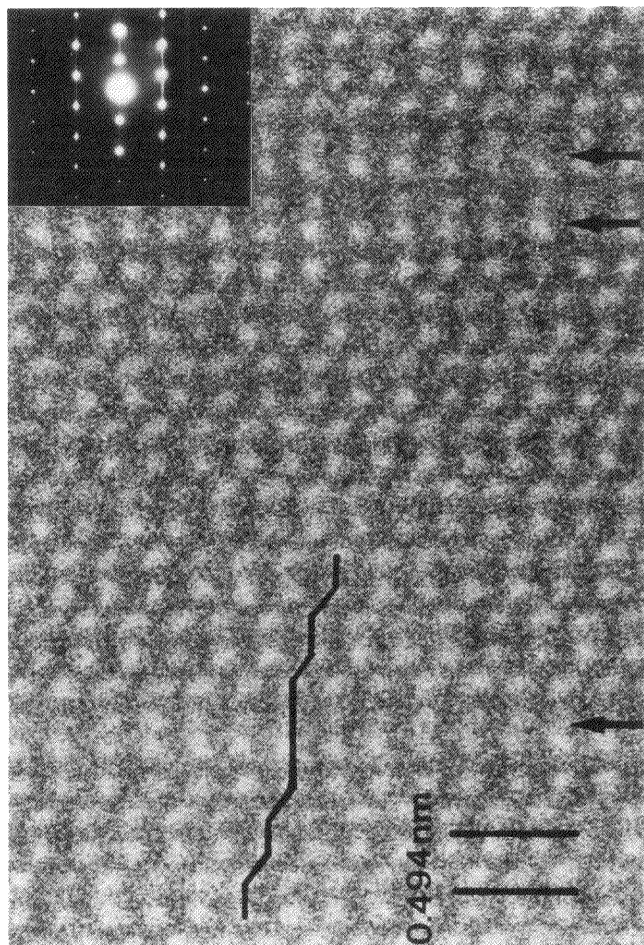


図5 FeSi₂(β 相)中の成長欠陥

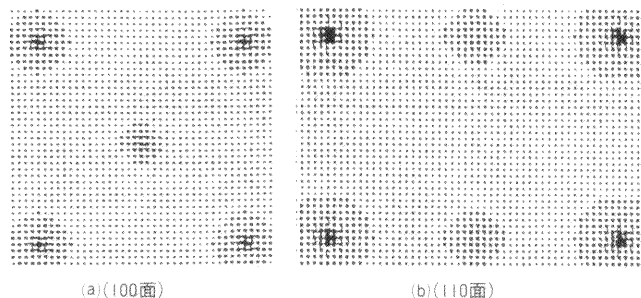


図6 NiAlの(a)(100)面, (b)(110)面投影ポテンシャル

合金の異種原子列を格子像で区別する試みをした。B2型(CsCl型)構造の結晶を $\langle 100 \rangle$ および $\langle 110 \rangle$ 方向から観察すると異種原子列を区別することができる。図6はNiAlの(100)面および(110)面投影ポテンシャルであるが、大きい円はNi原子列、小さい円はAl原子列を示している。したがって、十分に高い分解能をもつ電頭でNiAlの(100)面又は(110)面格子を観察すればNi原子列とAl原子列を区別できると期待される。

図7は観察されたNiAlの(100)面と(110)面の格子像の一例である。それぞれの写真右上にマルチスライス法で計算した計算像を挿入してある。(100)面の格子像中では $d_{200} = 0.14\text{nm}$ が分解されるとともに、像のコントラストが強い点列と弱い点列に分けられる。この観察像は計算像との比較から、強いコントラストのNi原子列と弱いコントラストのAl原子列に区別できた。しかし、(110)面の格子像中では $d_{220} = 0.1\text{nm}$ が分解され、原子列の存在しない場所にも輝点が出現し、その結果図6(b)に対応する像が得られなかった。(100)面の格子像も常に図7(a)のようなものが得られるとは限らず、原子列の位置以外にも輝点がしばしば認められたりした。

このように格子定数の小さい規則合金では電頭の分解能が向上しても、常に原子列に対応するコントラストだけを観察できるわけでないから、注意深い像解釈が必要である。

4.4 NiTiの電子線照射誘起非晶質と結晶の境界の観察

非晶質の結晶化過程を高分解能像観察で明らかにすることを試みた。NiTiは低温で高エネルギー電子線照射すると容易に非晶質化する¹⁴⁾。この電子線照射誘起非晶質は、試料温度を室温以上に上昇させると、その非晶質コントラストを変えると同時に非晶質領域とその周辺の結晶領域の境界が明瞭になる^{12),15)}。これらの観察結果は非晶質の結晶化前駆段階と考えられ、その詳細を調べるため非晶質と結晶の境界を高分解能像観察した¹⁶⁾。

173Kに保持したNiTiを2MeVの電子線で300秒間照射すると、照射領域中央部は完全に非晶質化するが、周辺部は電子線のガウス分布型強度のために膜厚方向全体にわたり非晶質化せず、その結果非晶質と結晶の境界が幅広くなっている。しかし、照射後温度を上昇させると広い範囲にわたっていた非晶質と結晶の境界が狭くなり、ほぼ473K付近でそれが線状になる。この実験結果はNiTi非晶質中では473K以下でも原子の再配列が起こり、非晶質化が完全でない領域の結晶化が起こっていることを示唆している。

図8は電子線照射誘起非晶質領域を含む試料を373Kで

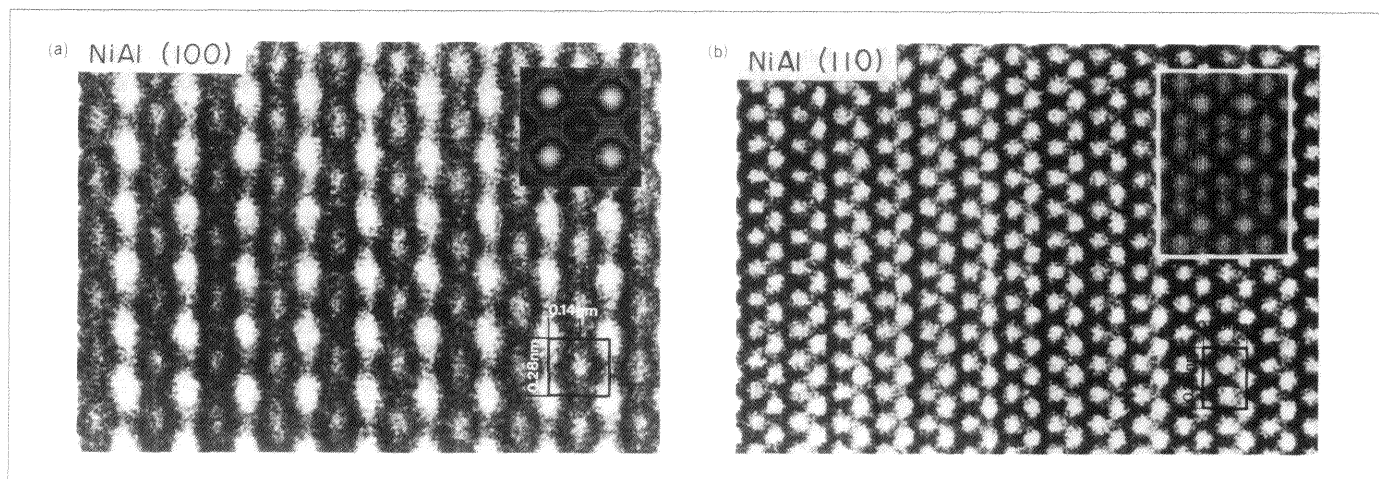


図7 NiAlの(a)(100)面, (b)(110)面格子像

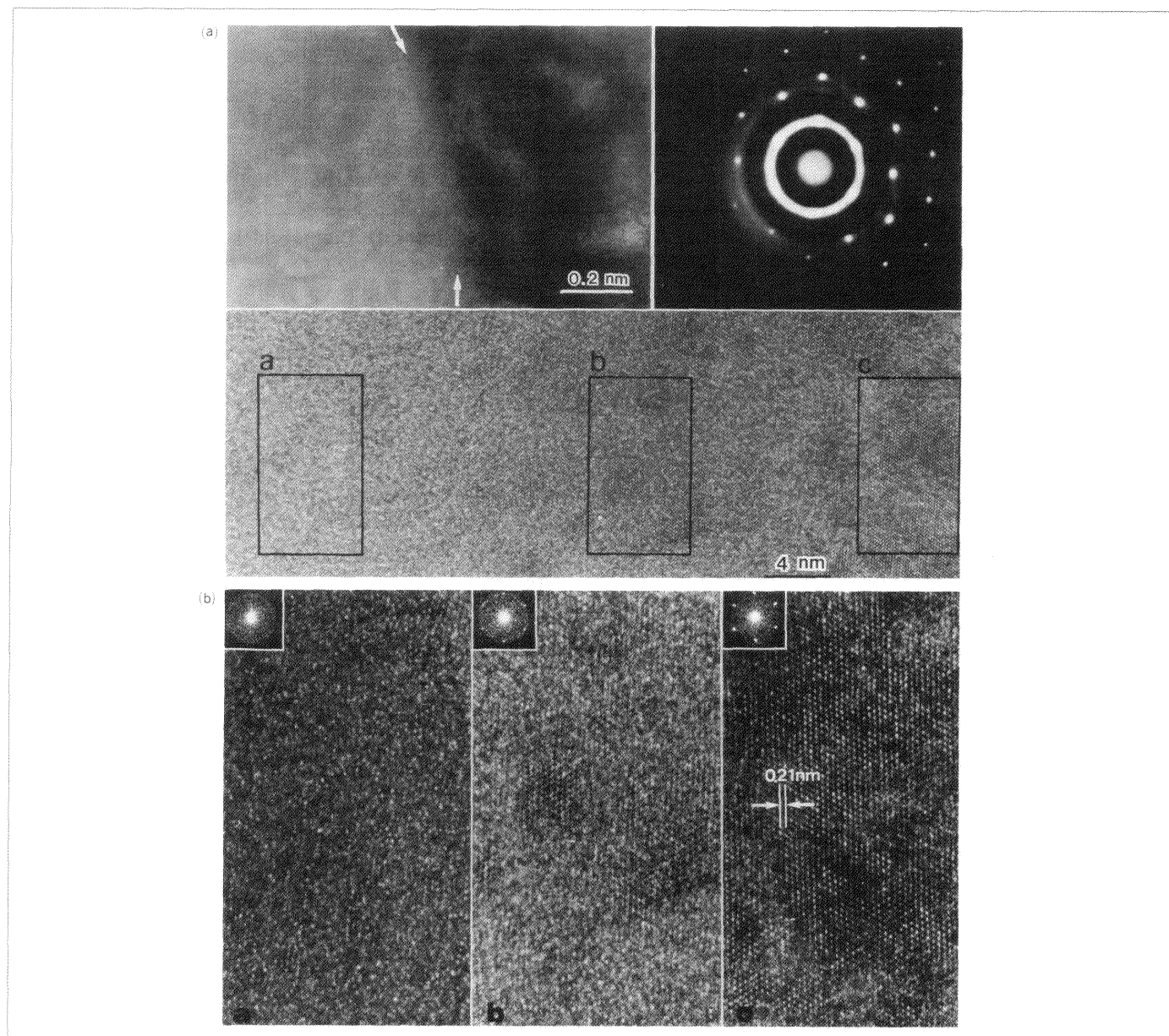


図8 NiTiの電子線照射誘起非晶質とその周辺の結晶の高分解能像

5 分間焼鈍し、非晶質と結晶の境界を観察したものである。電顕像は結晶領域の方位 [111] に合わせて結晶と非晶質の両方を同一視野で観察した。同図(a)の左上の明視野像中に示した白い矢印を結ぶ線付近が結晶と非晶質の境界である。右上にある境界を含む領域の回折像から、この領域は結晶と非晶質の境界であると判定できる。結晶と非晶質の境界付近の高分解能像が(a)の下部に示されている。四角で囲まれたa, b, cの領域の拡大写真とその領域での光回折像が同図(b)に示されている。電顕像とその光回折像の両方からa, b, cの各領域はそれぞれ非晶質、非晶質と微結晶の混在、結晶に分かれていることが判る。当然のことながら、結晶領域から非晶質領域に移るにつれて微結晶の大きさが小さくなっている。さらに非晶質領域といえども不完全ながら結晶中の原子列の並びが保存されている場所も多く存在する。この観察結果は非晶質の結晶化、または結晶の非晶質化への重要な手掛かりを与え、今後の定量的な観察結果とあいまって非晶質化および結晶化の過程を原子サイズで理解するための助けになると期待される。

5. おわりに

300kV超高分解能電顕を開発し、設計時に目標にした電顕の基本性能はほぼ達成された。次世代の汎用電顕と予想される超高真空電顕の実現を目指した設計思想から採用された真空系により、観察中の試料汚染はほぼ一掃されたといえる。その結果、電子状態を分析（例えばオージェ電子分光）した試料を、空気中におくことなく高真空の電顕に装着する試料交換装置を開発すると、原子構造と電子状態の対応を得る予備の実験ができる。そして来るべき超高真空電顕による原子の状態分析実験の基礎データを蓄積したい。また、対物レンズの強励磁でレンズの球面収差係数を小さくすることができたので、超高分解能像を得ることができた。さらに、試料ホルダーの試料寸法を $\phi 3\text{ mm}$ としたので傾斜機構の精度が向上し、結晶の観察に威力を発揮するとともに、傾斜機構の他に付加的な機構を取り付ける空間的余裕が生まれた。今後試料ホルダーの開発を進め、TVモニターの設置などとあいまって高分解能像観察下でのその場観察を行なう予定である。

300kV電顕の開発は窪添守起ほか日立那珂工場のメンバーおよび阪大・電子ビーム研究施設の裏 克己、鷹岡昭夫

と共同で、また高分解能像の観察は阪大・超高压電顕センターの坂田孝夫、工学部の田口英次、大学院の見島常雄らとの共同で行なったものである。これらの人々の協力に感謝する次第である。

参考文献

- 1) 藤田広志、裏 克己、佐藤 恒、宮内恭一、小内俊男、四伊一生、窪添守起：日本電子顕微鏡学会第41回学術講演会、p.135 北海道大学、1985
- 2) R. Uyeda, M. Nonoyama and M. Kogiso : J. Elec. Micro. **14**, 296~300 (1965)
- 3) P. H. Pumphery : Proc. 5th European Cong. on EM 466~467 (1972)
- 4) J. L. Hutchison, G. M. Anstis, C. J. Humphreys and A. Ourmand : Inst. Phys. Conf. Ser. No. 61, p. 357~360
- 5) K. Lonsdale : Proc. R. Soc. Lond **179A**, 315~320 (1942)
- 6) T. Evans and C. Phaal : Proc. R. Soc. Lond. **A270**, 538~552 (1962)
- 7) A. R. Lang : Proc. Phys. Soc. **84**, 871~876 (1964)
- 8) A. R. Lang : Phil. Mag. **36**, 495~500 (1977)
- 9) J. L. Hutchison, L. A. Bursill and J. C. Barry : EMAG 81, Cambridge (1981) ; Inst. Phys. Conf. Ser. No. 61, p.369~372
- 10) H. Matthes, D. Bialas and J. Hesse : J. Mat. Sci. **5**, 181~182 (1970)
- 11) 見島常雄、角田直人、藤田広志：日本金属学会講演概要、96回東京大会、1985、p.180
- 12) 藤田広志、角田直人、坂田孝夫、田口英次、見島常雄：日本金属学会講演概要、p.408 (97回新潟大会、1985)
- 13) 藤田広志、田口英次、角田直人：日本金属学会講演概要、p.325 (98回東京大会、1986)
- 14) G. Thomas, H. Mori, H. Fujita and R. Sinclair : Scripta Meta. **16**, 589~592 (1982)
- 15) 坂田孝夫、松井洋介、藤田広志：日本金属学会講演概要、p.272 (95回広島大会、1984)
- 16) 藤田広志、坂田孝夫、角田直人：日本金属学会講演概要、p.59 (98回東京大会、1986)

Topics

第24回分析機器展

第24回分析機器展が、2月18日から21日までの4日間、東京・晴海の見本市会場西館で開催されました。前回まで、この展示会は応用スペクトロメトリ東京討論会とともに東京都立産業会館台東館で11月に開かれていたものであり、別々になったのは今回初めて



のことです。最新の分析機器が79社から出展され、約2万5,000人が入場しました。昨年にもまして盛会であり、分析機器に対する関心の強さが示されていました。展示品は表面分析、バイオ関連の機器が増加し、最近の科学技術

の進歩と産業の動向を反映していたのが特徴といえます。

日立は“次世代のニーズに応える日立科学機器”をテーマとして、走査形電子顕微鏡、クロマト分析装置をはじめとして紫外可視、赤外、原子吸光など広範囲の製品を展示しました。いずれの機器も、次々と説明を求められ、大変な盛況でしたが特に新形アミノ酸分析計L-8500形の高感度迅速分析が注目を集めていました。

来年も今回と同じ会場で3月2日から4日間、開催される予定です。

(内野興一記)

多孔質ガラスの骨格構造の電子顕微鏡による観察

Observation on the Inter-connected Pore Structure of Porous Glass with High Resolution SEM and TEM

山田 直子* 植村 功** 松淵 勇** 大隅 正子***

(昭和61年4月4日受理)

1. はじめに

多孔質ガラスは、ガラスに新しい特性を与えたものとして、研究と実用が進められているが、以下のような特徴を備えている。(1) 原ガラスの熱処理により、細孔径を数nmから数千nmまで変化させることができる。(2) 細孔面積が大きい。(3) 他のセラミックス多孔体と比べ、狭い範囲での細孔径制御が可能である。(4) ケイ酸質系材料のため、耐熱性、耐薬性に優れており長期間の使用に耐える。(5) セラミックであるため有機材料と異なり細菌におかされない。(6) 機械的強度が比較的大きく、細孔構造も安定であること、そして(7) 任意の形状を付与することができる。現在実用化に近づいているのは、精密濾過やガス分離などの工業用途であるが、さらに医療やバイオテクノロジーの分野でも、実用化に向けて研究開発が進んでいる。例えば血液透析やウイルス細胞成分の分離、固定化酵素の再抽出などの応用が試みられている。

この報文では、多孔質ガラスの開発研究の一環として、走査電子顕微鏡 (SEM) や透過電子顕微鏡 (TEM) を用いて行なった最近の研究結果について紹介する。具体的に、その構造の直接観察にはSEMを用い、また微細な細孔の高倍率観察は、SEMの分解能の限界に近いと考えられるため、多孔質ガラス表面を直接TEMで観察し、SEM像と比較検討した。

2. 多孔質ガラスの製造方法

単一相ガラスが、二つ以上のガラス相に分かれる現象を分相という^{1)~4)}。このガラスの分相現象を利用して、酸可溶成分を溶出除去したものが多孔質ガラスである。原料としてケイ酸 (45~65%)、アルミナ (0~10%)、ホウ酸 (15~30%) 等のホウケイ酸ガラスを使用し、これを1400~1500°Cで溶融し、直径3mmのパイプ状に成形した(図1)。

これをガラス転移温度域で熱処理すると、イオンの移動が起こりホウ酸ナトリウム相とシリカ相の2相に分離する。この分相ガラスを酸処理し、酸に溶けないシリカ相だけを多孔質の骨格として残した。骨格表面に析出するゲルは、アルカリ処理で脱ゲルし、シリカ相骨格の細孔を持つ多孔質ガラスを作製した(図2)。細孔径は130nm, 15nm, 9nmを作製した。

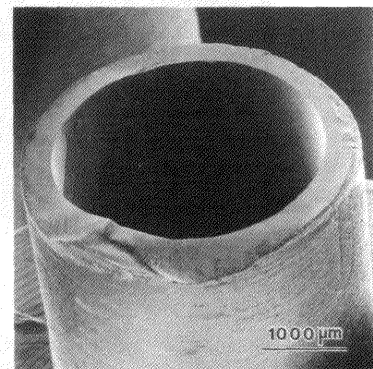


図1 成形された多孔質ガラス

3. 電子顕微鏡による観察のための試料作製法

SEMで観察するために、多孔質ガラスの表面および長軸と短軸方向の平滑な切断面を作製した。試料はそのまま導電性カーボンペーストを用いて、試料ホルダーに取り付けた。非導電性試料であり、さらに複雑な細孔を有する試料の観察のため、Balzers BAF 301により、電子ビーム回転蒸着法でコーティングを行った。Pt-C (95:5) を45度の角度から2nm回転蒸着した。膜厚は水晶クリスタルにより測定した⁵⁾。一方、直接TEM観察のためには多孔質ガラスをすりつぶして懸濁分散法で試料作製した。また別法として、1段レプリカ法も行った。SEM用に作製した切断面と同一と考えられる試料面の凹凸のレプリカ膜を作製した。レプリカ膜は、Pt-C (95:5) を25°から約1.5nmと、C補強を90°

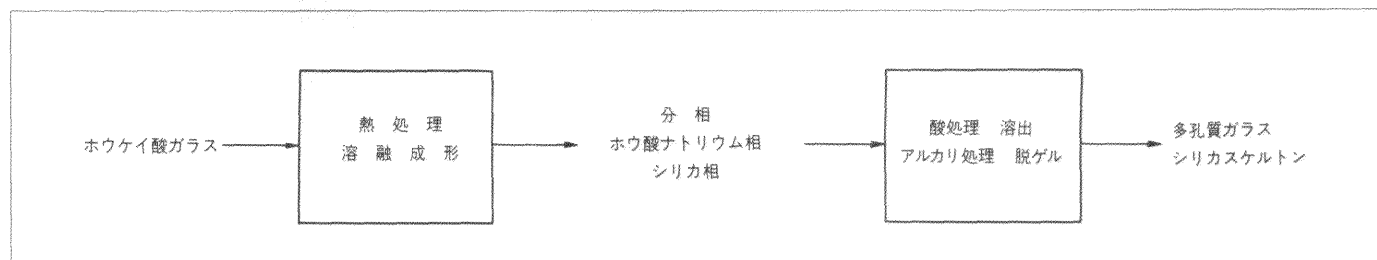


図2 多孔質ガラスの製造方法

* 日本女子大学 電子顕微鏡施設

** 伊勢化学工業株式会社

*** 日本女子大学 生物学教室 教授 医博

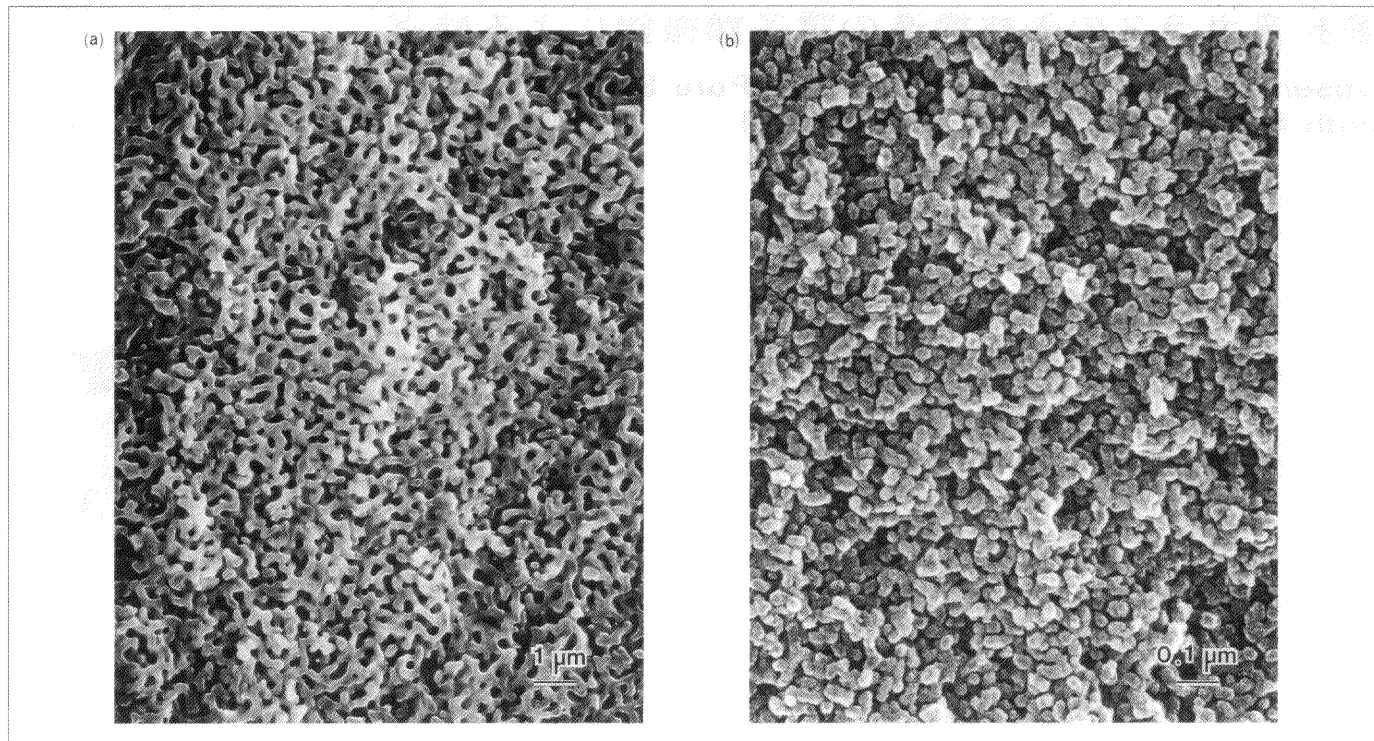


図3 骨格構造(a)SiO₂(85%), Al₂O₃(1%), その他(14%) (b)SiO₂(96%), Al₂O₃(1%), その他(3%)

から約20nm, 電子ビーム回転蒸着により作製した。多孔質ガラスの溶解は、フッ素酸を使用した。SEM観察はS-800型を用い4~30kV, 30~5mmで、TEM観察はJEM-100B型を用い100kVで行った。

4. 多孔質ガラスの分相構造

SEMによる観察により、分相された2相は、数nmから数百nmのオーダーで複雑に絡み合っている様子が示された。三次元的にも均質であり、また、多孔質ガラスのシリカ相骨格には一定の方向性は観察されなかった。骨格構造は、原料組成や熱処理時間や温度によって差異を生じることから、これらの条件によって多孔質ガラスの形状と細孔径が変化することが知られている^{6,7)}。今回の研究においても、細孔径の大きいものはケイ砂の含有量が少なく、逆に細孔径の小さいものでは、ケイ砂の含有量が多くなっていることが判明した。細孔径が小さくなると、三次元構造も密に絡み合ったものとなり、球形の粒子は、個々独立して存在するように観察された(図3a, b)。

細孔分布および細孔径は、水銀圧入法により島津製作所ポアーサイザー-9305型の水銀圧入式ポロシメーター(ポロシメーター)によって測定した。細孔径が130nm, 15nm, 9nmの多孔質ガラスについて比較検討した結果、電子顕微鏡によるものと、ポロシメーターによるものはよく一致した。測定した水銀圧入曲線を比較すると、図4に比べ図5では、cumulative intrusion volumeのカーブは垂直に立ち上っており、細孔径がよく揃っていることを示している。これはシリカ相骨格の状態を示しており、多孔質ガラス製品の判定に利用でき得るものである。図4は細孔径15nmの状態を示しているが、SEM像でも細孔径は大きいものから

小さいものまで混在し、骨格表面には、脱ゲルが不完全のため、残留したゲルの付着が認められる(図6)。図5は細孔径9nmのものであるが、図7で示すように細孔径は表示の9nm付近でほぼ揃っていた。またガラス球形粒子の表面にゲル付着も認められず、明瞭にシリカ相骨格を示した。さらにポロシメーターでは、測定できる最小細孔径が5nmであるのに比べ、SEMによる表面観察法では、約3nmの細孔(図7a矢印)までも観察することが可能であり、骨格状態を高倍率で立体的に観察することができた。

この試料の1段レプリカ法によるTEM像はSEMに対応させるため、TEMによるレプリカ像を反転して示した(図7c)。レプリカ像は無コーティングで直接シリカ相骨格を示しているが、SEM像と同様なガラス球形粒子と細孔が認められる。このことから、試料にコーティングを行って観察するSEM像は、ほぼ忠実にシリカ相骨格表面構造を観察し得ることが確認された。また細孔径が数百nmにも大きくなると、ガラスをすりつぶし直接TEMで観察する方法では、ガラスが壊れて観察することができなかった。このような試料の観察法としては、SEM法とTEMによる1段レプリカ法が有効であった(図8a, b)。

最後に骨格現象をより明確に認識するために、画像処理により写真のカラー化を行った。即ち黒白の濃淡に色分けをして、疑似カラーを作り出した。この結果、図9a矢印では大きな細孔としか確認されていない部分が、図9b矢印のように、実は2つの小さな細孔で構成されていることが明瞭となった。そして分相によって生じた細孔は、ほぼ揃った大きさを持って絡み合う構造を保っていることが判明した。このように画像処理によるカラー表示は立体的に分

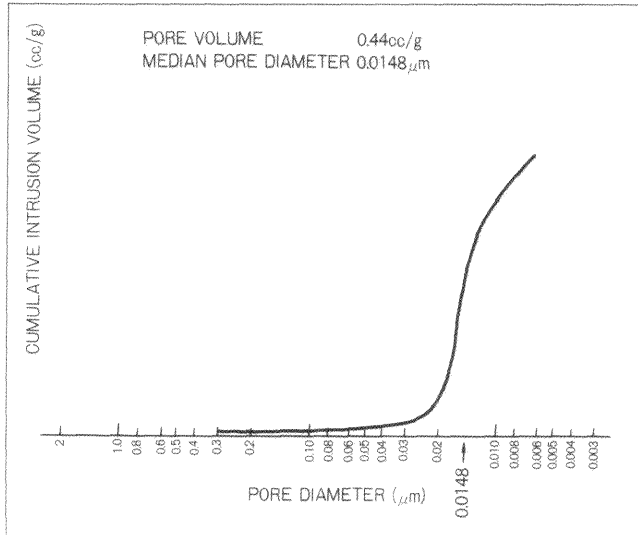


図4 水銀圧入法細孔測定結果(細孔径15nm)

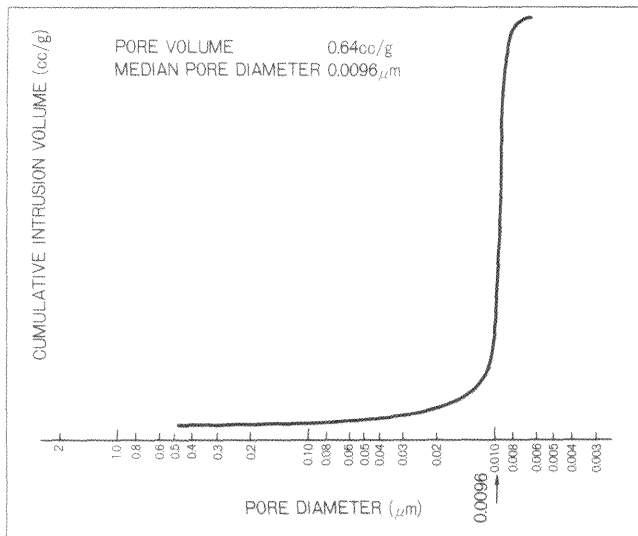


図5 水銀圧入法細孔測定結果(細孔径9nm)

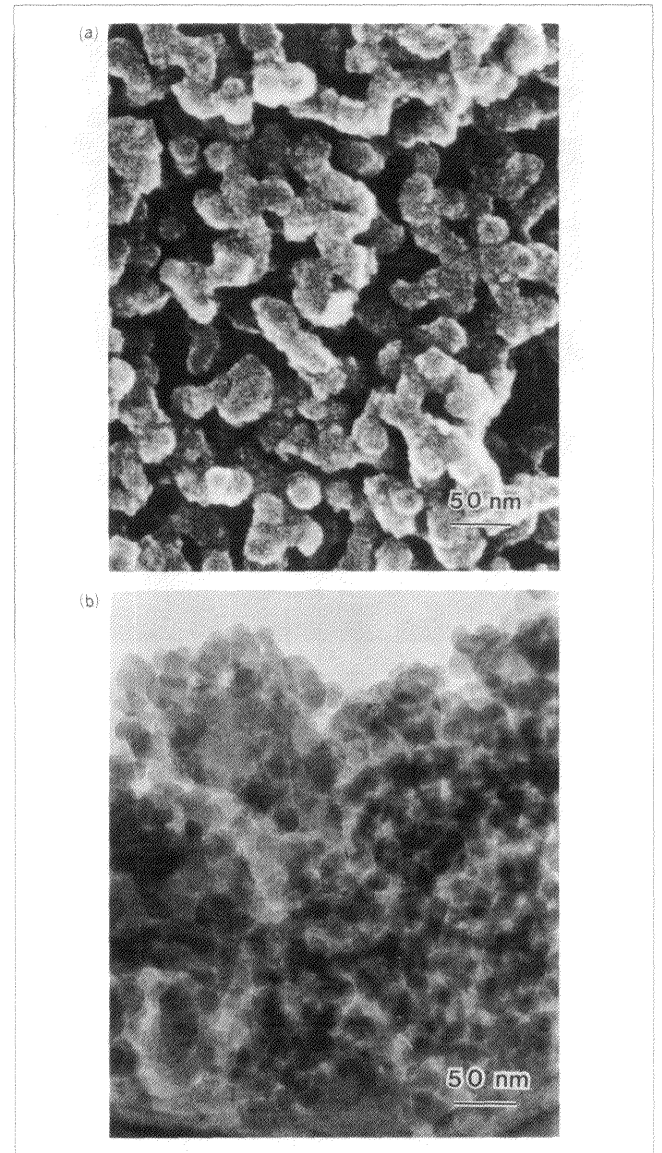


図6 図4に示された多孔質ガラス(細孔径15nm)(a)SEM像, (b)TEM像

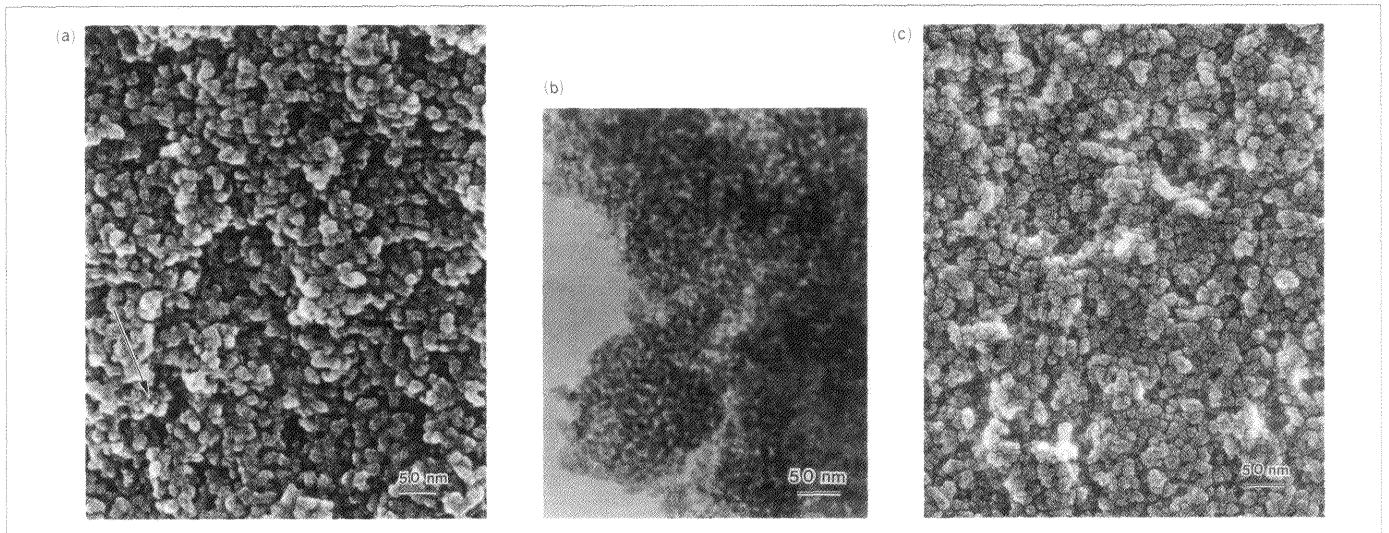


図7 図5に示された多孔質ガラス(細孔径9nm)(a)SEM像, (b)TEM像, (c)TEMレプリカ像

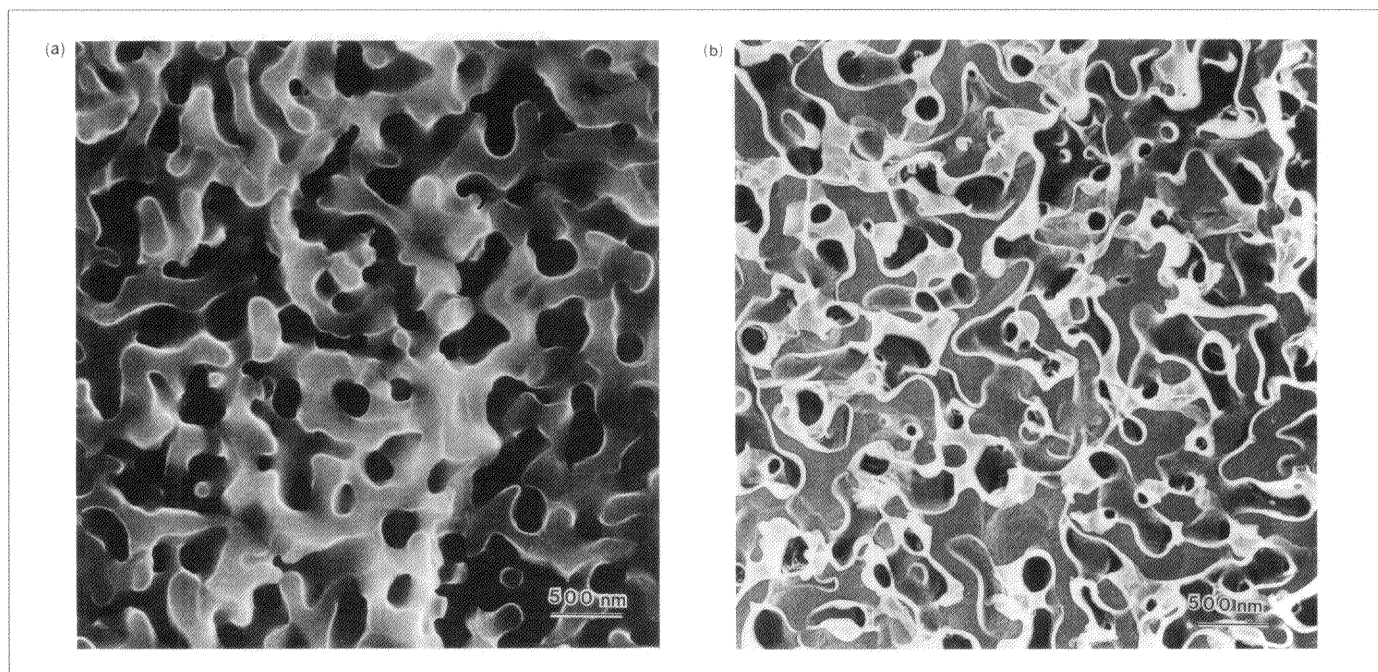


図8 細孔径130nmの多孔質ガラス(a)SEM像, (b)TEMレプリカ像

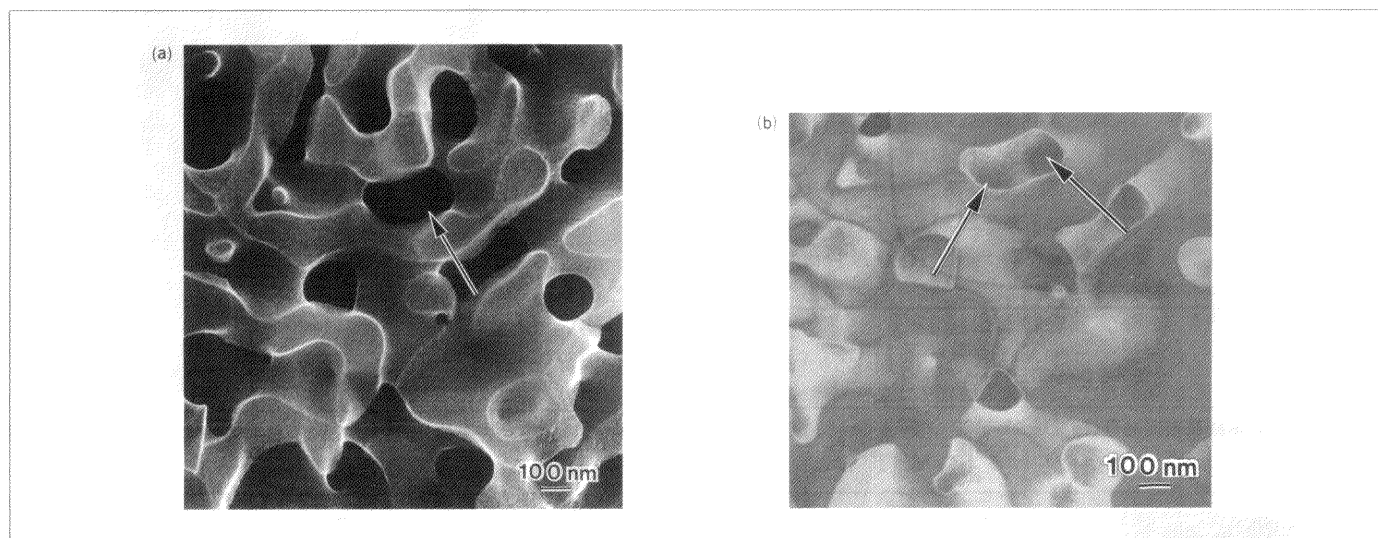


図9 細孔径130nmの分相構造(a)オリジナル像, (b)画像処理による疑似カラー(細孔矢印)

相状態を調べるための有効な手法になるものと考えられ、複雑に連続して絡み合っているシリカ相骨格で、細孔がどのように続いているか、細孔の立体構造を解析する手法として利用できるとと思われる。

以上の結果は、電子顕微鏡による観察が多孔質ガラスの骨格構造や物性を解明する上で有効であることを示し、多孔質ガラスの開発研究の重要な手掛かりとなるであろう。

参考文献

- 1) Nordberg, M. E. : J. Am. Ceram. Soc. 27, 288 (1944)
- 2) 毛利良雄, 江口清久, 植月倫夫: ガラス工学ハンドブック 653~660, 朝倉書店, 東京 (1963)
- 3) 岡本恒夫: 技術シリーズ「ガラス」19, 朝倉書店, 東京 (1982)
- 4) 山根正之: ファインセラミックスハンドブック 522, 朝倉書店, 東京 (1984)
- 5) Yamada, N., Nagano, M., Murakami, S., Ikeuchi, M., Oho, E., Baba, N., Kanaya, K. and Ohsumi, M. : J. Electron Microsc. 32, 4, 321~330 (1983)
- 6) 中島忠夫, 黒木裕一: 日本化学会誌 8, 1231~1238 (1981)
- 7) 矢沢哲夫, 田中博史, 江口清久: 日本化学会誌 8, 1338~1340 (1984)

マウスの受精の過程—SEM観察—

Fertilization Process in Mice —Scanning Electron Microscopy—

近藤 俊三*

(昭和61年2月28日受理)

哺乳類の発生は鳥類・魚類などと異なり、排卵・受精・着床・誕生までを母胎内で過ごす。故にその過程を観察するには非常に不向きな材料である。しかし近来、卵の体外での培養の技術が完成されたことにより、その発生過程を観察することが容易となった。私達の研究所ではマウスを中心に実験発生学的研究がなされている立場から、今回は材料をマウスにしぼりその受精の過程のみを観察の対象とし、S-800SEMを用いて記載した。

1. はじめに

(1) 精子

精子は雄の精巣で形成され、精巣上体へ移動、成熟し、雌の生殖器官内に射出される。射出された精子数は $5 \sim 6 \times 10^7$ といわれているが、この膣から子宮そして卵管への長い旅の間に99%以上の精子が損耗し、受精の場である卵管膨大部に到達する精子の数は極めて少ない。その旅の間に精子は、受精をするために機能的にも、生理的にも大きな変化を得る。これが受精になくてはならない受精能の獲得である。

(2) 卵子

雌の卵巣内で成熟した卵子は第一極体を放出し、第二成熟分裂中期の状態では卵丘細胞に囲まれている。排卵直後の卵子は顆粒膜細胞の集団である卵丘細胞に囲まれている。排卵された卵子は卵管内に取り込まれ卵管膨大部で精子と出会い受精する。

(3) 体外受精の方法

15~20週令の雄マウス(Slc:ICR)の精巣上体から精子を採取し、パラフィンオイルで覆った微小滴培養法で1時間培養する。この間に精子は受精能を獲得する。7週令の雌マウス(Slc:ICR)にPMSG(7iu)とhCG(7iu)を腹腔内に注射し排卵させ、成熟卵を卵管膨大部より採卵する。あらかじめ培養により受精能獲得した精子と卵子を同じ培養液中にいれ媒精し適当な時間培養し観察に供した。

SEMでの観察の都合上表面の卵丘細胞、卵を囲んでいる透明帯などその時に応じ酵素を用いて取り除き表面を露出させて観察した。

2. 受精

卵巣(図1, Ova)から排卵された卵子は、卵管采(図1, 矢印)から卵管内(図1, Ovi)に取り込まれる。卵管采の表面構造は繊毛が密にあり(図2)、この繊毛の運動が卵子を運ぶともいわれている。卵子は受精の場となる卵管膨大部(図3)へと移動し、精子と出会い受精する。受精卵は発生に伴い卵管を経て、子宮(図1, U)へと移動する。

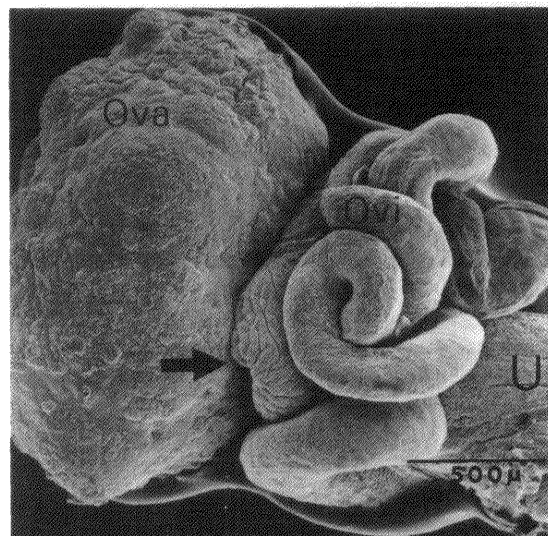


図1 卵巣(Ova)卵管采(矢印)卵管(Ovi)子宮(U)

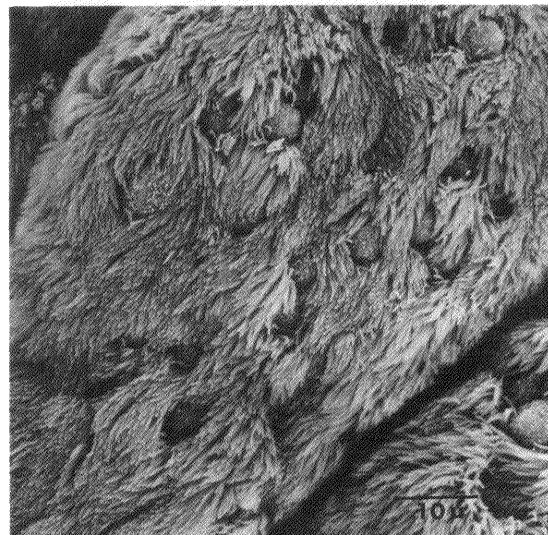


図2 卵管采の拡大図

(1) 精子と卵丘細胞群

図4は卵管膨大部の精子と卵子の出会いの場を観察したもので、卵丘細胞群(一部を機械的に除去)を通過した精子が卵子の保護層である透明帯(糖蛋白質から成る)に精子先体部分で付着(矢印)している様子がうかがえる。卵子を取り巻く卵丘細胞群に遭遇した精子は(図5)、先体膜酵素の働きと鞭毛運動によって卵丘細胞群の間を縫うようにして卵子表面に向かって進む。図6は、精子が通過した

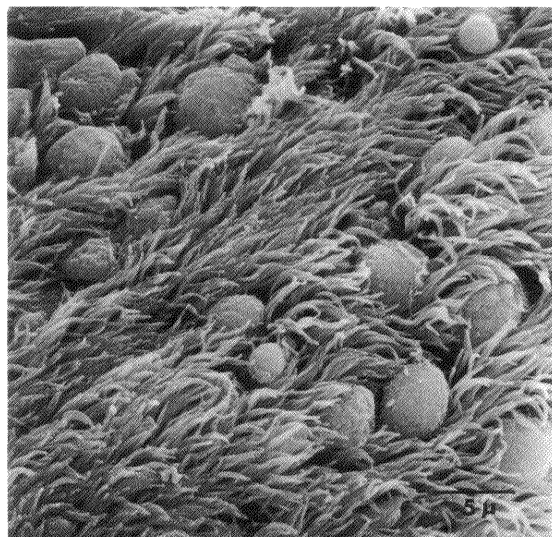


図3 卵管膨大部拡大図

直後の卵丘細胞群の状態を示している。長い旅路の末ここまで辿り着く精子は、射出された精子のたったの0.0001%であるという。

(2) 精子と透明帯

さて、精子は最後の関門である透明帯を通過しなければ、卵子表面に到達することはできない。図7～10は、透明帯に到達した精子の侵入過程を示す。ここからの図は全て体外受精による。また卵丘細胞群はヒアルロニダーゼで消化、除去してある。透明帯を通過するときの透明帯と精子の関わりあいはまだ明らかではないが、透明帯のレセプターと精子が結合して侵入をするという説がある。この説によると透明帯の種特異的なレセプターが精子と結合し先体膜酵素が透明帯をまず溶解し、それに鞭毛運動が加わる。しかし、この問題は未解決の部分が残され今後の課題である。それはさておき、まず透明帯へ付着した精子(図7)は激しく鞭毛を動かしながら透明帯の中へ頭を突っ込み、卵子

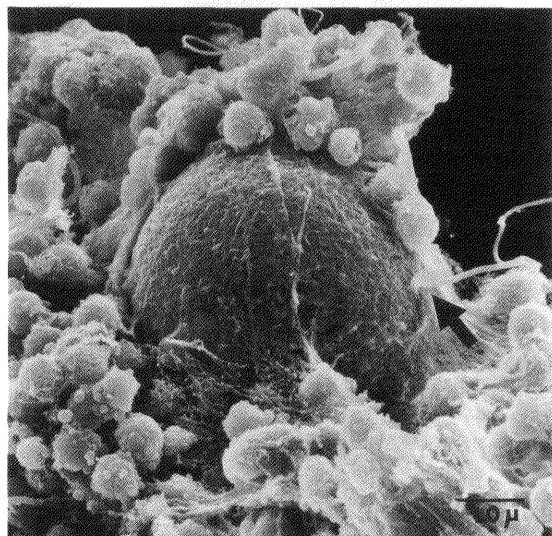


図4 卵管膨大部内の卵丘細胞群と卵子及び精子(矢印)

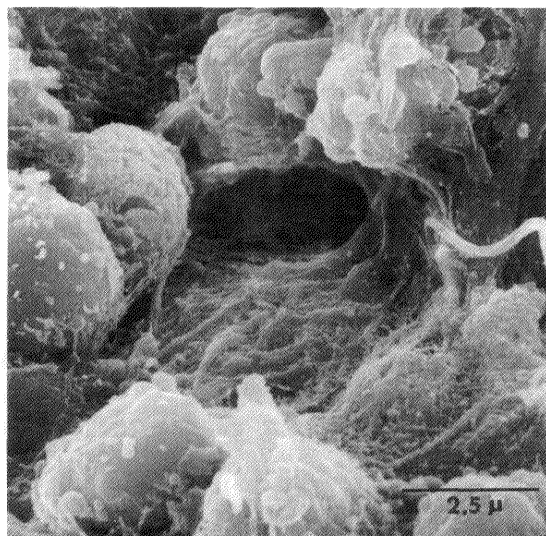


図6 精子が卵丘細胞群を通過した痕跡

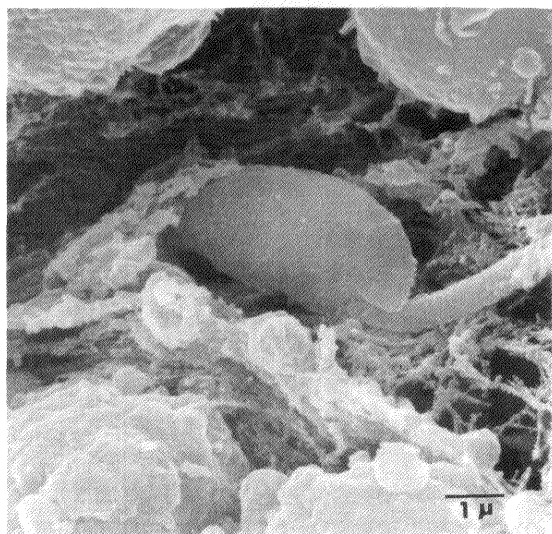


図5 卵丘細胞群を通過中の精子

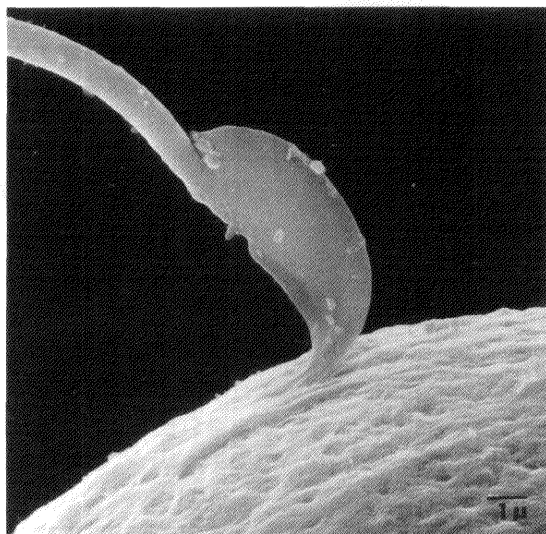


図7 透明帯に付着した精子

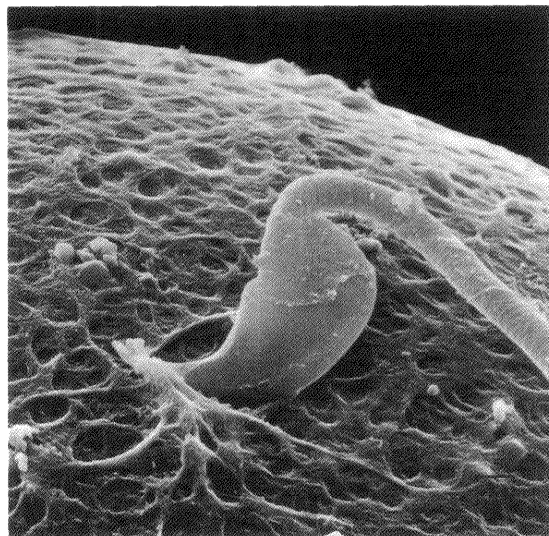


図8 透明帯侵入中の精子 ①

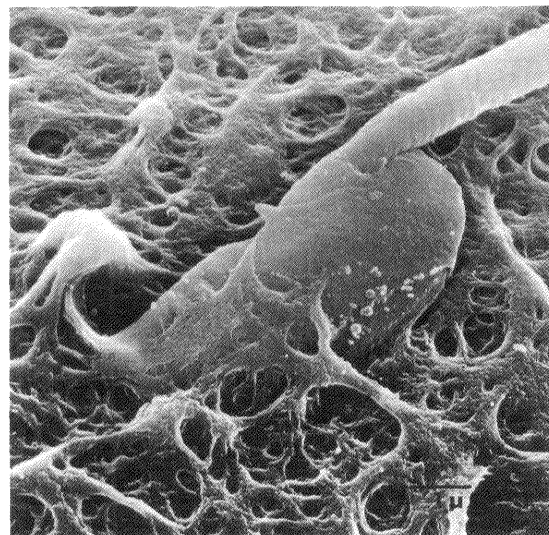


図9 透明帯侵入中の精子 ②

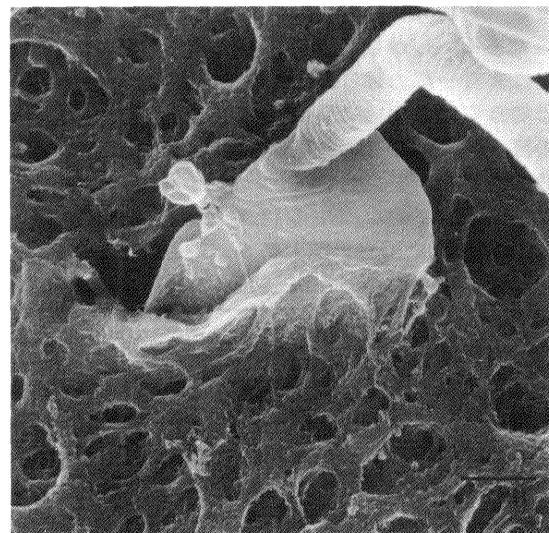


図10 透明帯侵入中の精子 ③

原形質膜へと突き進んで行く(図8～10)。網目状の透明帯は、先体膜酵素の作用を受けているようにはうかがわれる(図8～10)。精子の頭部は鞭毛の推進力で更に進み、透明帯を貫通して(図11)精子全体が卵卵腔へと進入する。透明帯に精子侵入の痕跡が認められる(図12)。時として、透明帯に精子侵入跡がいくつか認められ、2, 3匹の精子が卵卵腔に存在する事があるが、受精できるのは1匹の精子のみであり、多精子受精の阻止がされている。この巧妙な仕組みは種により異なるが、透明帯や卵子原形質膜が阻止作用をしていると言われている。

卵子原形質膜表面にたどり着いた精子(図13)は、膜表面の微絨毛に捕捉され卵子原形質膜へと引き寄せられる。そして精子先体内膜と卵子原形質膜の膜融合が起きる(図14)。これがまさに受精の瞬間であり、不思議なことにこれまで活発であった精子の鞭毛運動が止まる。そしてこの膜融合の後、精子頭部は卵実質内へと引き込まれて行く(図

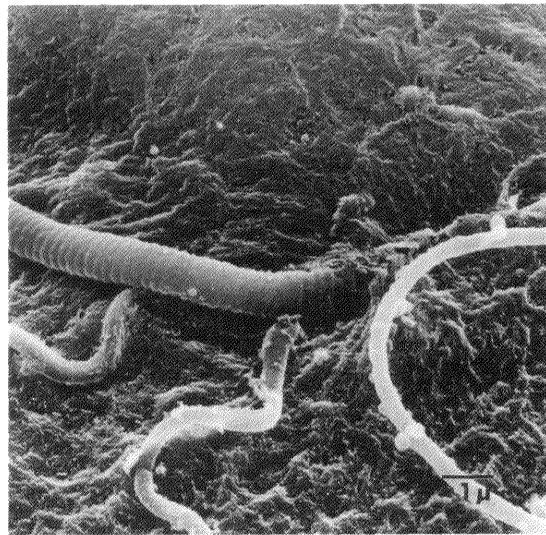


図11 精子頭部が透明帯を貫通

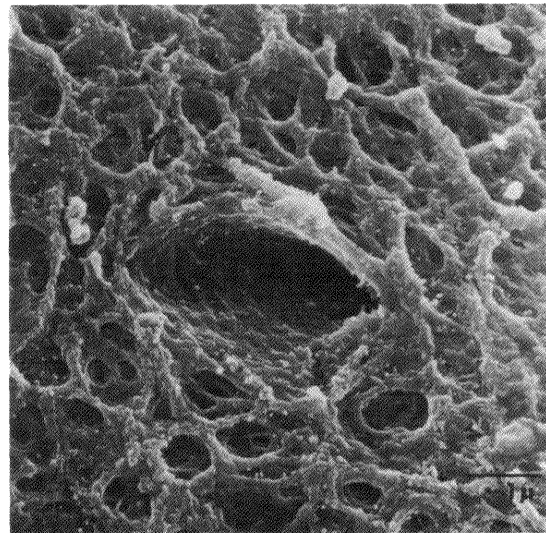


図12 透明帯の精子侵入後の痕跡

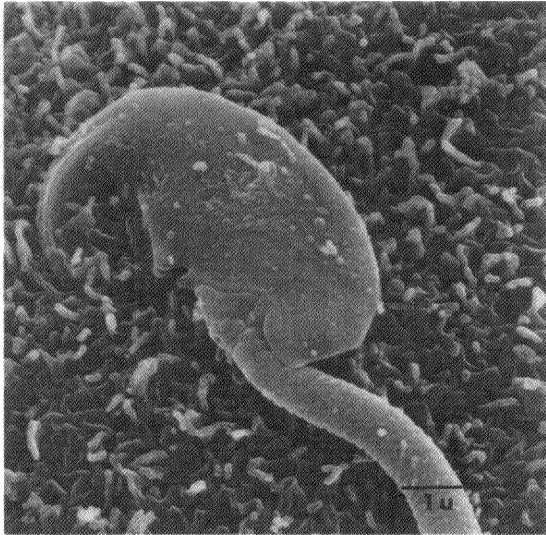


図13 卵子原形質膜と精子

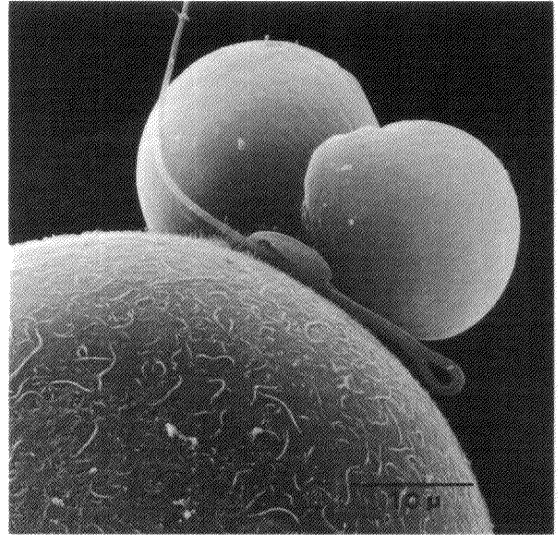


図16 第二極体の放出を終えた卵子。受精に関与しなかった精子が卵子表面に付着しているのが見受けられる。

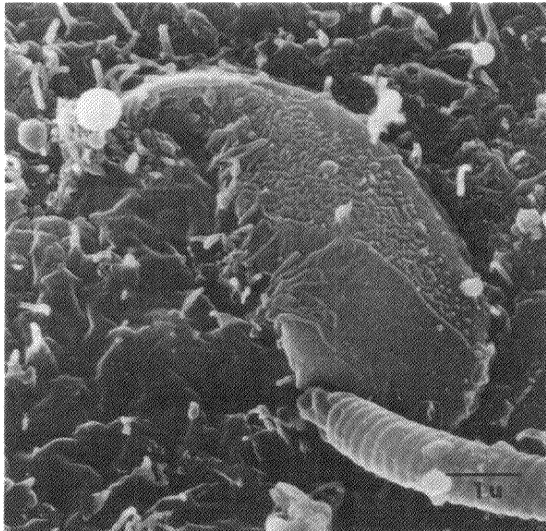


図14 微繊毛に捕捉された精子頭部

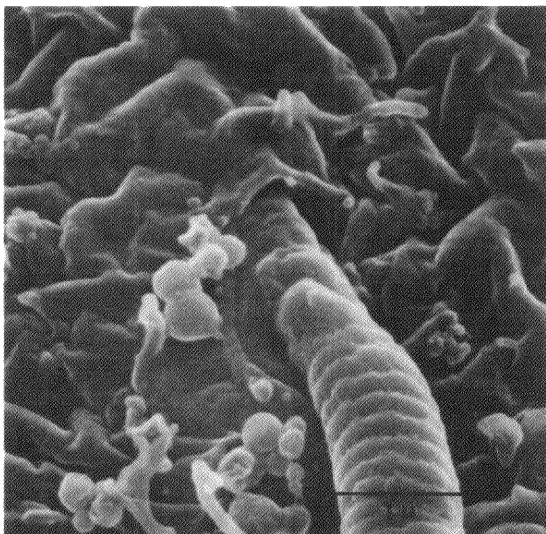


図15 卵実質内に引き込まれてしまった精子頭部

15)。図13～15までは卵子表面を保護している透明帯をブローナーで除去して観察した。

精子先体内膜との膜融合が始まると卵子は第二成熟分裂中期で静止していた卵核が再び分裂を始め、第二極体を放出（減数分裂、図16）し、雌性前核を形成する。一方精子頭部も卵子内に進入すると膨潤し、不正形となりやがて核膜を持った雄性前核となる。そして雌性前核と雄性前核は互いに中央部へ移動して接近する。やがて核膜が消失し染色体が出現する。受精の完了である。

3. 終りに

今まで受精の過程をSEMで観察してきたが、その受精卵はその後卵割を繰り返し、個体の形成へと出発する。胚盤胞の段階でこれまで卵を保護してきた透明帯を脱ぎ捨て子宮壁にしっかりと着床する。そして着実に成長し、誕生までを母胎内で過ごす。哺乳類の発生過程は全ての現象が母胎の中で進行して行くという特徴や、排卵される卵子の数や大きさ（約 $100\mu\text{m}$ ）などの問題からややもすると扱い難い材料である。しかし、培養法の確立や最近の体外受精法の進歩により一部の哺乳動物の発生過程は、主として実験発生の手法を用いて解明されてきた。しかし、まだ未解決の部分が多く今後の進展が望まれる。

電子顕微鏡の観察においては、免疫学的、組織化学的あるいは超微形態学的な面からTEMとの併用が望ましいが、今回はSEMでどれくらい迫れるか、を目的としてみた。また今回は報告できなかったが、SEMでの卵細胞内観察技法も試みている。

この報告作成に当たり、当研究所の加藤淑裕副所長と山崎君江技術室長に討議、ご指導頂いたこと、また動物の飼育と供給に関しては北条江利子研究助手と斉藤勝男飼育責任者に御尽力頂いたことを深く感謝する。

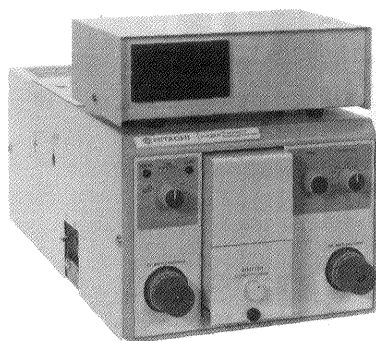
付記：図14と図16は高分子学会編“高分子ミクロ写真集”に掲載

参考文献

- 1) 入谷 明, 他: “精子の雌性器内移送と受精能獲得”, 性“I”代謝Vol.16 pp.299~361. 荻田善一, 松本圭史編 中山書店(1979)
- 2) 入谷 明, 鈴木秋悦, 井上生人: “-着床前-哺乳動物の初期発生pp.7~52. 妹尾左知丸, 他編, 理工学社(1981)
- 3) 岩松鷹史: “哺乳類の受精”, 受精の生物学pp.237~272. 日本発生生物学編 岩波書店(1977)
- 4) 菅原七郎: “哺乳動物卵子における受精過程”, 化学と生物Vol. 18. 2~14. 学会出版センター(1980)
- 5) 安田七郎編, 他: 生殖機能の組織学, 理工学社(1981)

Topics

F-1200/1300形 日立分光蛍光光度計



小形・低価格であるが、感度が高く、また任意に波長を選べます。操作パネルには、波長ダイヤル、シャッターつまみの他、ゼロ点、感度、レスポンスを選択するつまみがあるだけで、操作は単純明解です。特別付属装置のデジタル表示ユニットと組合せて使用することにより、環境計測、薬剤分析、生化学等の各分野におけるルーチン分析に、広く応用できます。キセノンランプを有し、広い波長範囲にわたり高感度測定が可能なF-1200形と、長寿命・高安定のメタルハライドランプを有するF-1300形の2種類があります。

10mmセルホルダが標準装備されていますが、特別付属装置の液クロ用各種フローセルと交換することは、きわめて容易です。

■主な仕様

主な仕様を表1に示します。

日立高速アミノ酸分析計“L-8500”を製品化 —バイオテクノロジー分野など新しい用途にも威力—



近年の食品化学、薬学、臨床医学等の分野におけるアミノ酸分析の検体数の増加や試料の微量化に対応して、標準アミノ酸及び生体アミノ酸ともに従来の約半分の分析時間で、しかも約1/10

の微量量まで分析できる全自動高速アミノ酸分析計「L-8500形」を製品化いたしました。

アミノ酸分析計は、蛋白質を構成する約20種のアミノ酸（標準アミノ酸）をはじめ、生体内に存在するアミノ酸（生体アミノ酸）40種以上をそれぞれ定量的に分析するもので、オートサンブラ、ポンプ、カラム（分離管）、反応ユニット及び検出器から成る分析部本体と、データ処理部（「D-2850形」）で構成されています。分析検体をカラムに導入、分離し、分離された成分を反応ユニットで試薬によって反応発色させ、その度合いを検出器で測定するものです。

新しい充填剤（分離のためにカラム内に充填する均一微小粒径のイオン交換樹脂）の開発と、徹底的な低ノイズ化をはかった新形ポンプの採用により高速・高感度化を実現しております。

■特 長

- (1) 充填剤の粒径を3 μ mとし、新しいカラム構造をとることにより、分析時間を従来の半分に短縮しました。
- (2) 検体数は108検体と増加し、大量処理を可能にしました。
- (3) ニンヒドリン発色法（検出下限10 pmol）のほかにオプションとして蛍光法も本体内に組込可能とし、500fmolのアミノ酸の検出も可能です。
- 専用のデータ処理装置にはピーク同定ミスを防ぐ同定認識機能を装備しました。計算結果はアミノ酸名の付記されたクロマトグラムとともに、レポート形式で打ち出されます。
- (5) 分析状態がCRT上にグラフィック流路で表示され、流量、温度、圧力、バルブの開閉が一目でわかります。
- (6) カラム温度コントロールや反応ユニットに水を使用しない。また、保守用テーブルで有寿命品管理ができるなど、使い勝手を優先にして設計されています。

表1 仕様

形 式	F-1200形	F-1300形
1. 光 源	150Wキセノン	60Wメタルハライド(寿命1,500時間)
2. 励起側波長域	220~650nm, 0次	220~450nm, 0次
3. 蛍光側波長域	220~730nm, 0次	220~730nm, 0次
4. バンド幅	15nm(励起側, 蛍光側とも)	
5. 試料セル	蛍光側専用10mmセル	
6. 感 度	水のラマン90以上 (励起350nm, 時定数1秒)	水のラマン80以上 (励起365nm, 時定数1秒)
7. 信号出力	10mV: 記録計, デジタル表示ユニット用 1V: データ処理装置用	

解 説

H-9000形日立高分解能電子顕微鏡

HITACHI Model H-9000 High Resolution Electron Microscope

窪添 守起* 佐藤 恒*

(昭和61年4月30日受理)

1. はじめに

透過形電子顕微鏡（以下、電顕と略す）の高加速電圧化は、像の高分解能化、試料観察の容易さ等多くの有利な点があるが、高加速電圧化に伴う装置の大型化、試料ダメージ等の問題が生じる。加速電圧に絡む種々の性能を考慮し、コストパフォーマンスを高める目的で、製作技術を総合的に検討し、加速電圧を300kVに設定した新しい超高分解能電顕H-9000を阪大・超高压電子顕微鏡センターと共同で開発した¹⁾。長年にわたって培ってきた超高压電顕の高度な技術を基に、汎用形電顕の高い信頼性と容易な操作性を備えたコンパクトな装置である。常時安定して高分解能像を得るための試み、清浄な真空等、本装置の持つ特徴を以下に紹介する。

2. 高分解能

高分解能像を得るためには、電子光学的な条件が全て整っていることと、機械的な振動、熱的ドリフト等の高分解能阻害要因を取り除くことが重要である。

2.1 電子光学的内容

電顕の理論分解能は、加速電圧が一定であれば、対物レンズの球面収差係数(C_s)で決まる($\delta = 0.65 C_s^{1/4} \lambda^{3/4}$, λ : 電子線の波長)。実使用状態では、これに色収差係数(C_c)の低減が必要であり、 C_s , C_c 両方の小さなレンズの開発が、高分解能像を得るための最大のポイントとなる。

H-9000では、有限要素法により磁気回路の設計も含め、 C_s , C_c の小さな値を持つ対物レンズポールピースの形状を決定した。その結果、加速電圧300kVで、0.9mmと世界最少の C_s を持つ対物レンズポールピースの開発に成功した。 C_c も1.5mmと小さいのが特徴である。図2は対物レンズの励磁の強さと、 C_s , C_c 及び試料位置の関係を示すグラフである。

図3はH-9000本体の断面図である。高輝度電子源として、単結晶Lab₆チップを常用し、3段照射系により50nmまで試料面上のビームサイズを絞る事ができる。5段結像系による像無回転倍率変化、像の方向と電子回析の方向一致等、試料の構造解析に容易な機能が取り入れられている。これらの機能は、すべて装置に内蔵されたCPUによりレンズ系を制御することで実現されており、操作は極めて簡単である。

2.2 機械的・熱的・高分解能阻害要因の除去

高分解能阻害要因としていちばん大きなものは、試料と

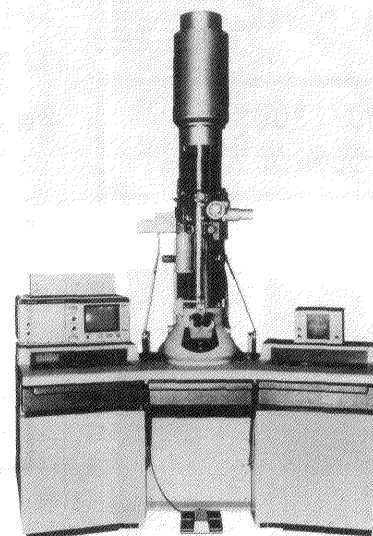


図1 H-9000外観写真（超高分解能バージョン）

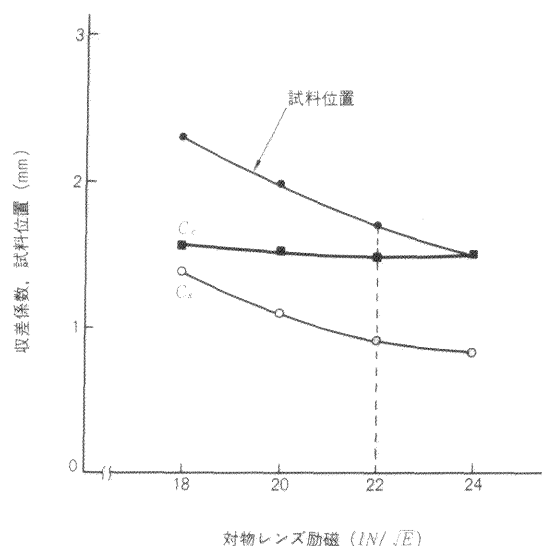


図2 対物レンズポールピースの特性

対物レンズポールピースとの相対変位である。機械的振動であれ、熱的ドリフトであれ、この変位がオングストロームのオーダーで存在していれば、0.1nm (1 Å) 前後の性能を得る事はできない。この高分解能阻害要因を除去するためには、トップエントリーステージの採用が絶対条件となる。

*日立製作所那珂工場 電子装置設計部

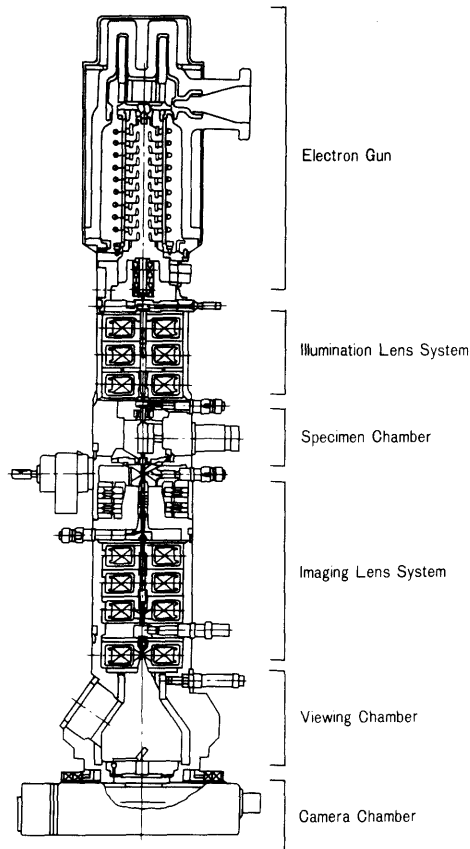


図3 H-9000鏡体断面図

トップエントリーステージは、対物磁路上面に電子線光軸に対し対称に設置される構造で、サイドエントリーステージのような片持ち方式構造ではないため、振動に対しても、熱ドリフトに対しても好ましいステージである。H-9000では、超硬メタルによる3点支持方式でステージを対物磁路上面に載置する方式であるため、3点による水平面

で保持され、振動に強く、試料微動としては円滑な動きをする。

鏡体全体のたわみも高分解能阻害要因である。鏡体をできるだけ鋼体構造とするため、鏡体を二重構造とし、外壁を厚い鏡体としている。その内側に、各レンズを磁気回路的に独立した状態で挿入して、各々を軸調整した後、機械的にきつく固定している。

装置の設置床面からの振動を除去するため、鏡体を載せた架台の除振は従来からゴム又は鋼スプリングの除振材が使用されてきたが、固有振動数、振動の減衰等に難点があり改良が望まれていた。H-9000では、密封式空気ばねを使用した。空気ばねの持つ固有振動数の低さと、空気を密封しているゴムの減衰効果を活かし、優れた防振効果で、超高分解能機能をフルに発揮できる。

熱的ドリフトの原因の一つに、対物レンズコイルの励磁電流による発熱が対物磁路に伝わり、対物磁路に熱不平衡を起こさせるのがある。

H-9000ではこれを防ぐため、対物レンズボビンを熱的に対物磁路から遮蔽し、かつ励磁コイルには銅条を用い、コイル内で発生するジュール熱を効率良く外部へ取り出せるように工夫している。

H-9000では、0.1nm（格子像）、0.19nm（点分解能）を保証している。図4にH-9000の超高分解能対物レンズの位相コントラスト伝達関数を示す。図5(a)はH-9000で撮影したシリコンの高分解能写真であり、図5(b)はその光回析像で0.187nmの点分解能を示している。

3. 清浄な真空

超高分解能での像観察、微小部元素分析、電子回析などを正確に効率よく行うため、また試料ダメージを助長させないためにも試料を清浄に保つことが必要である。試料汚染の原因は、Oリングや真空内部品からのアウトガスなどがあり、H-9000では清浄な真空状態を保つため次のような工夫をしている。

(1) 排気系

(a) 排気速度の大きい340l/sの磁気浮上形ターボ分子ポンプで鏡体を排気している。ターボ分子ポンプは、試料汚染の原因となるハイドロカーボン系の比較的重いガス分子をよく排気する特性をもっている。また作動中はロータが電磁気力で軸受部から完全に浮上した状態で高速

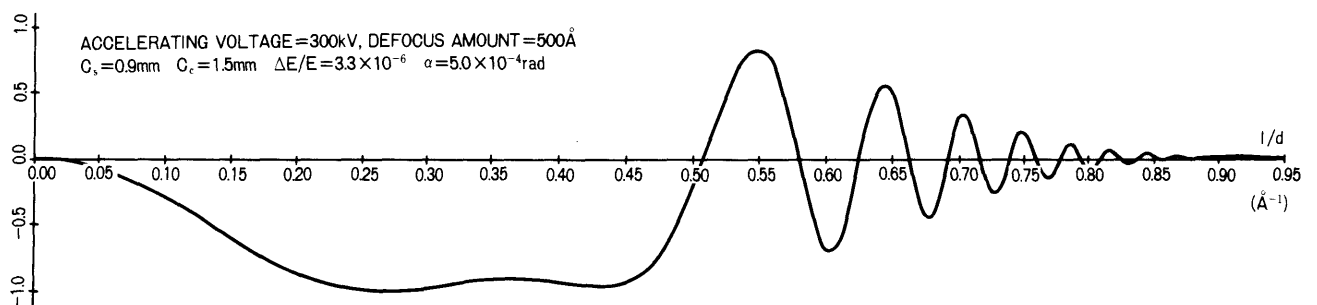


図4 位相コントラスト伝達関数

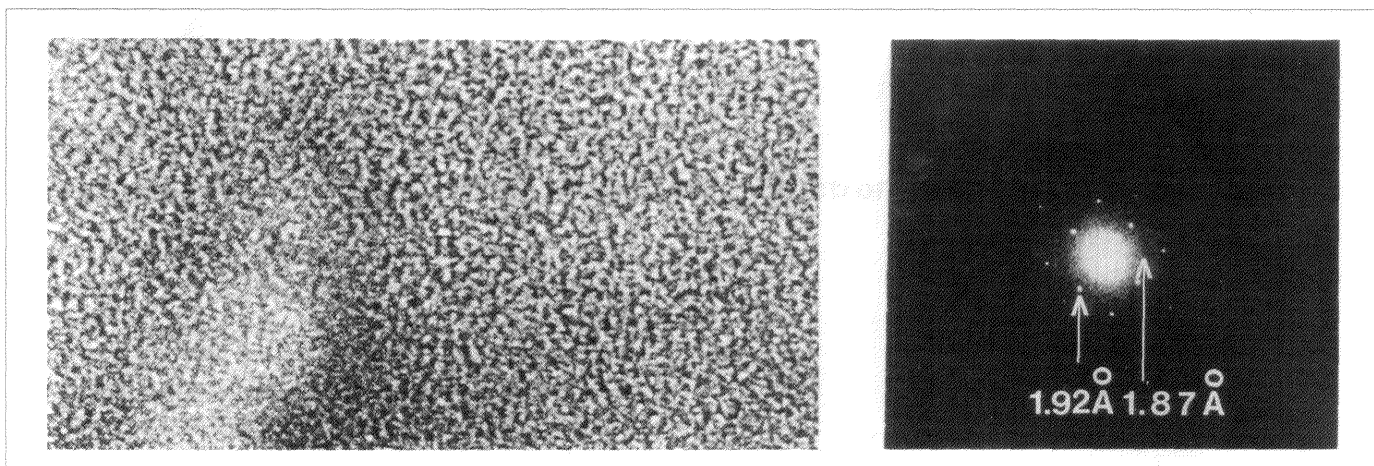


図5 シリコンの高分解能写真と光回析像

回転しており、振動もなく、信頼性も飛躍的に向上している。軸受部に潤滑油を必要としないのも磁気浮上形ターボ分子ポンプの特徴で、完全オイルフリーの排気系になっている。

(b) 分子流での排気管のコンダクタンスは、管径の3乗に比例する。鏡体のすぐ近くまで内径 $\phi 128$ の排気管を用い、コンダクタンスを大きくし、ターボ分子ポンプの排気速度の大きさを有効に働かせるようにしている。

(c) すべてメタルパッキン（ヘリコスレツクス）を用い

て、アウトガスの低減を図っている。

(d) 主排気管後部に大容量のコールドトラップを設け、クライオポンプとしての働きを持たせている。水蒸気の方圧を下げるのに大きな役割を果たしている。

(e) 電子銃部の排気に独立に60l/sのイオンポンプを用いており、装置全体として独立3系統排気方式を採用している。

(2) 鏡 体

(a) 電子線通路のみをライナーチューブにより真空シールし、排気しなければいけない容積を極端に少なくしている。

(b) 可動絞り等可動部はメタルベローシールを用い、摺動部のOリングをなくしている。

(c) 鏡体と観察室の間の差動排気。鏡体の最底部に挿入したオリシスと、鏡体の要所に挿入した固定絞りにより作動排気の効果を持たせ、観察室と試料室とは2桁の圧力差を保つことができる。

(d) 観察室と鏡体の間にバルブを設け、観察室の真空が充分上ってから鏡体と継ぐ方式を取っている。

真空内組込み部品はすべて高真空処理が施されており、図7の残留ガス分析結果が示すように、ハイドロカーボンの分圧は 10^{-8} Pa (10^{-10} Torr)の桁に入っており、像観察、試料分析中の試料汚染の問題は解決されたと言える。

4. おわりに

通常の部屋に設置可能な加速電圧300kVの電顕H-9000について、特に高分解能に重点を置いて説明した。分析についても稿を改めて説明したい。

H-9000の開発は、阪大・超高圧電顕センター藤田 広志、阪大・電子ビーム研究施設の裏 克己、鷹岡 昭夫、及び阪大・工学部角田 直人らとの共同で行ったものである。これらの方々の協力に感謝する次第である。

参考文献

- 1) 藤田広志、裏 克己、佐藤 恒、宮内恭一、小内俊男、四伊一生、窪添守起：日本電子顕微鏡学会第41回学術講演会、P. 135 北海道大学（1985）

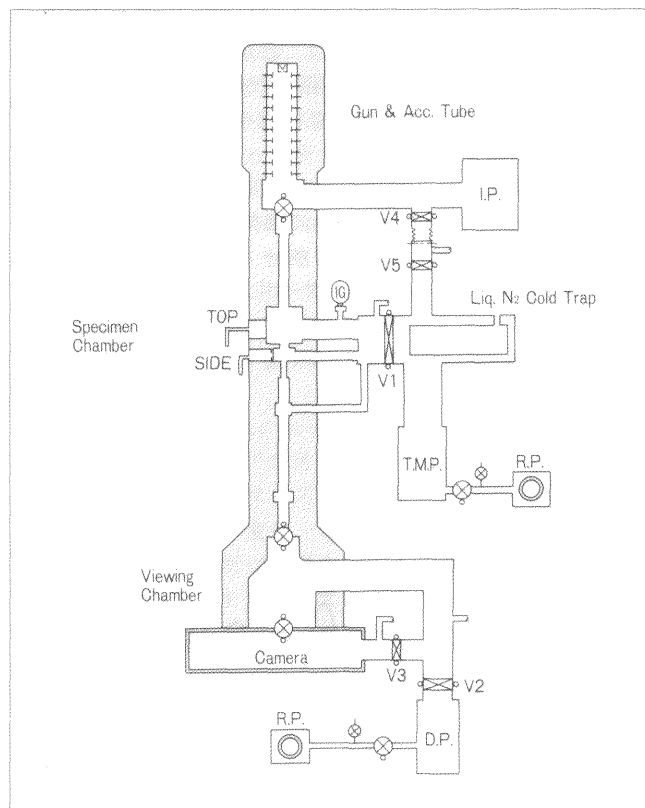


図6 H-9000排気系説明図

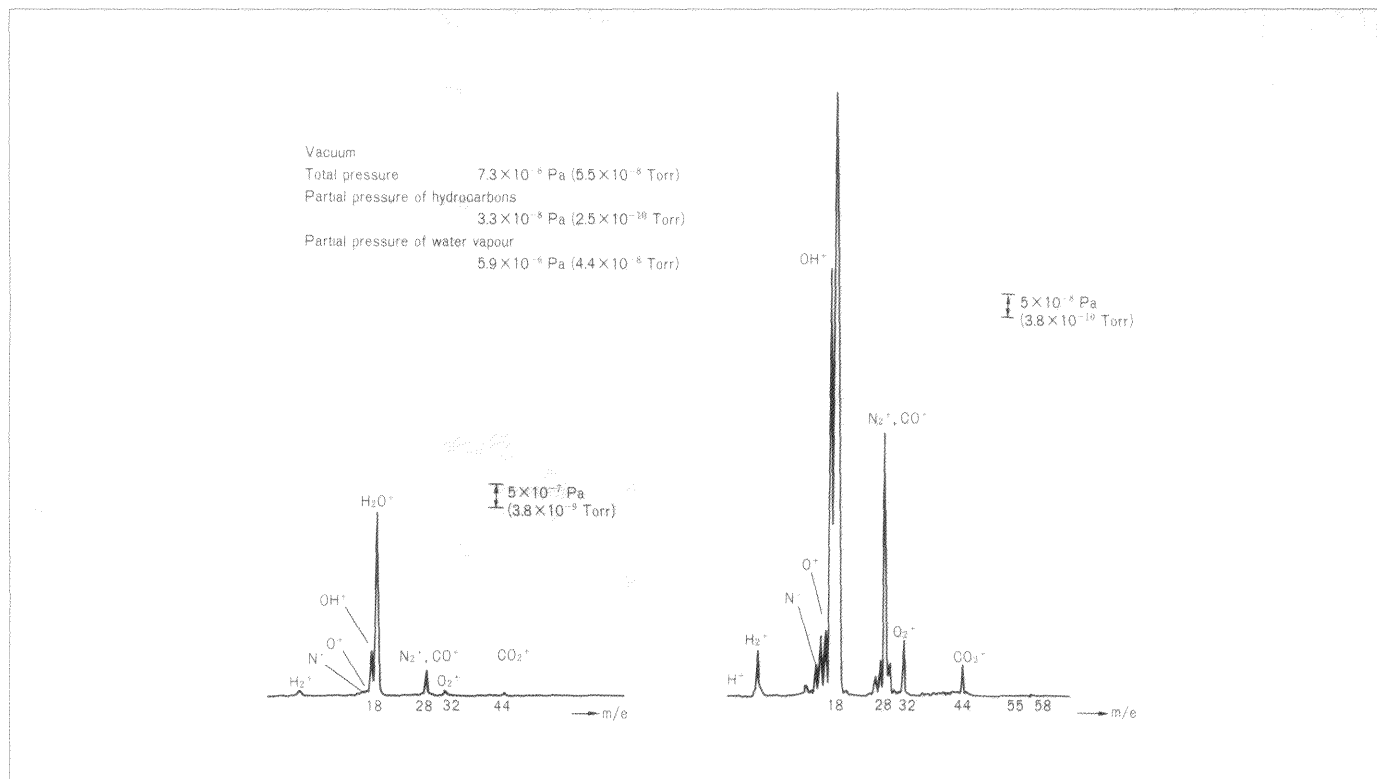
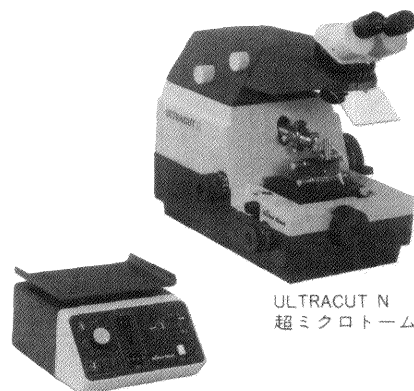


図7 H-9000残留ガス分析結果

Topics

日製産業OEMブランド REICHERT-NISSEI ULTRACUT N ウルトラミクローム 販売開始

日製産業科学1部輸入課では、二十数年にわたってDu Pont (米国) 製の電子顕微鏡試料切削用ウルトラミクロームの販売を行ってきました。しかし、同社はミクローム部門から撤退することになり、当部では急きょREICHERT社(オーストリア)とOEM契約を結び、REICHERT-NISSEIのOEMブランドのULTRACUT N形ウルトラミクローム及びFC-4DN形クライオセクションニングシステムを発売することになりました。Du Pont社は製造、販売権をRMC社に売却したとのニュース



コントローラ

がありますが、現在、世界でウルトラミクロームの製造メーカーはREICHERT社(オーストリア)、LKB社(スウェーデン)の2社だけとなりました。両社ともそれぞれに特長を持っていますが、今回発売のULTRACUT Nは、伝統の超精密加工技術と最新のエレクトロニクス技術により、顧客のニーズにマッチした理想的の機能と操作性を持っています。特に、
(1) ステッピングモータを用いた再現性の良い機械送り機構
(2) バックラッシュがゼロの高精度ナ

イフステージ微動

(3) 超薄切片と準超薄切片のワンタッチ切替のできるデュアルオートマッチック送り機構
(4) 3種の照明光源組合せによる6種の照明
(5) その他、使用者の立場で作られた豊富なアクセサリ
は顕著な特長であります。またFC-4DN形クライオセクションニングシステムは、 $-190^{\circ}\text{C} \sim +120^{\circ}\text{C}$ の広い範囲でナイフと試料ホルダはそれぞれ独自に温度設定ができるので、アーティファクトのない凍結生物切片の作製や、常温下では切削不可能な高分子等、素材の切削に大きな力を発揮します。

このウルトラミクロームの登場により、日立電子顕微鏡とともにREICHERT-NISSEI ウルトラミクロームがナノテクノロジー開拓に大いに貢献できることを期待しております。

なおアフターサービスは、日立計測器サービス㈱が行ないます。また、既納Du Pont社製品については、引き続き日立計測器サービス㈱でアフターサービスを行っております。

U.D.C. [537. 534. 2 : 546. 36-128. 4] : [537. 534. 8 : 543. 51]

IMA-3形日立イオンマイクロアナライザ用Csイオン源

Cs Ion Source of HITACHI Model IMA-3 Ion Micro Analyzer

泉 栄一* 有馬 義雄* 岩本 寛* 志知 広康** 田村 一二三**

(昭和60年10月1日受理)

1. はじめに

二次イオン質量分析装置 (SIMS) は、固体試料に一次イオンを照射し、試料から放出する二次イオンを質量分析し、元素分析および分子同定などを行う表面分析装置である。SIMSのうち、特に一次イオンビーム径をサブミクロンオーダーまで細束化し、微小領域の分析ができる装置をイオンマイクロアナライザ (IMA) と呼んでいる。SIMSは、オージェ電子分光装置 (AES)、X線マイクロアナライザ (XMA=EPMA)、X線プローブ光電子分光装置 (XPS=ESCA)、イオン散乱スペクトロスコープ (ISS) など他の表面分析装置と比べ、最も高い検出感度を有している。このためSIMSは、極低濃度 (ppb~ppm) 不純物の高感度分析に広く用いられている。しかしSIMSは、一次イオン種として O^+ や O_2^+ イオンを用いたとき、電気陽性元素に対しては高い検出感度を有しているが、電気陰性元素に対しては感度が低く、元素間の感度差が大きい特性を有している。図1に一次イオン種として O^+ を用いた場合の正の相対二次イオンイールド I_2 とイオン化電圧の原子番号依存性を示す²⁾。一方、SIMSで検出される二次イオン電流 I_2 は次式で表わされる。

$$I_2 = I_1 \cdot \eta \cdot S \cdot K \cdot C$$

ここで I_1 : 一次イオン電流

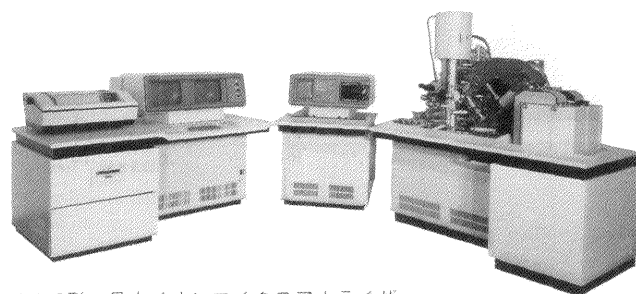
η : 二次イオン利用効率

S : スパッタリングイールド

K : 二次イオンイールド

C : 検出元素濃度

上式から、 I_1 、 η 、 S 、 K が感度向上因子となることがわかる。先に報告したIMA-3形イオンマイクロアナライザ³⁾⁻⁶⁾では、改良形ホロカソードイオン源の採用による I_1 の増大、二次イオンの重直引出系と立体収束質量分析計の採用による η の増大、一次イオンの大電流化と斜入射による S の増大などを行い電気陽性元素の感度向上を行っている。更に、IMA-3ではこの度、電気陰性元素の負の二次イオンイールド K を改良し、感度向上を計るべく、Csイオン源を開発した。一次イオン種としてCsを用いた場合の負の相対二次イオンイールド⁷⁾と電子親和力の原子番号依存性を図2に示す²⁾。図1と相補的な関係を有し、C、O、Si、S、Te、Auなど電気陰性元素の感度が大幅に向上することがわかる。また負の二次イオンイールドは定性的に、電子親和力で説明できることがわかる。このように O_2^+ または O_2^- イオン源と C_s^+ または C_s^- イオン源を使い分けることにより、ほとんどす



IMA-3形 日立イオンマイクロアナライザ

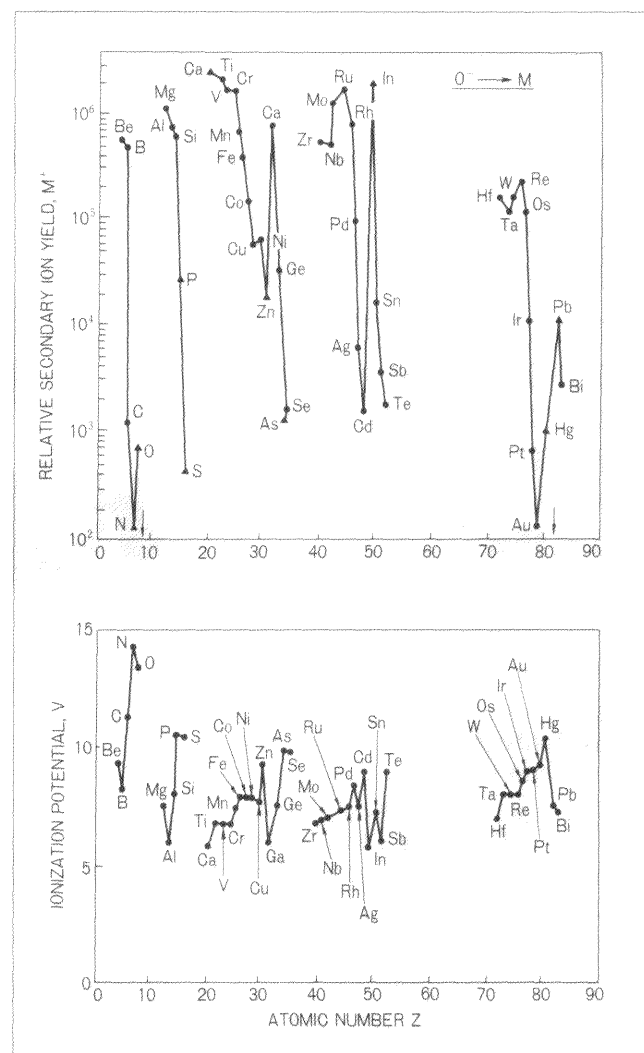


図1 正の二次イオンイールドとイオン化電圧

* 日立製作所 那珂工場

**日立製作所 中央研究所

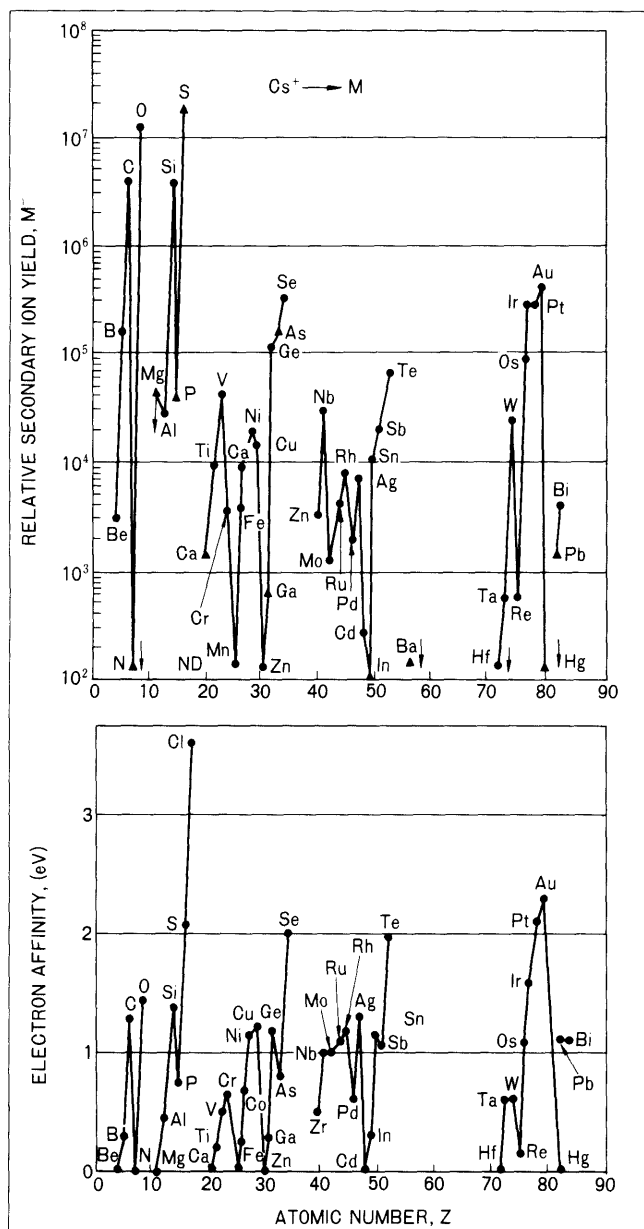


図2 負の二次イオンイールドと電子親和力

すべての元素を高感度分析することができる。以下Csイオン源の原理、構成、応用例について報告する。

2. Csイオン源の原理および構成

2.1 Csイオン源の原理

表面電離形のCsイオン源を開発した。表面電離形における正イオン生成機構は、図3に示すエネルギー準位図で説明することができる。W, Ta, Reなど大きな仕事関数を有する温度Tの金属表面にイオン化電圧I ($I < \Phi$)の元素が吸着し脱離する過程において、元素の原子価電子が金属表面の伝導帯へ移動し元素はイオン化し放出される。

金属表面へ吸着する元素の粒子数を n_0 とし、表面から脱離するイオン数を n_i とすると電離度 α は次式で与えられる。

$$\alpha = n_i / n_0 + n_i = \omega \exp(e(\Phi - I) / kT)$$

ここで ω は元素によって決まる定数、 k はボルツマン定数

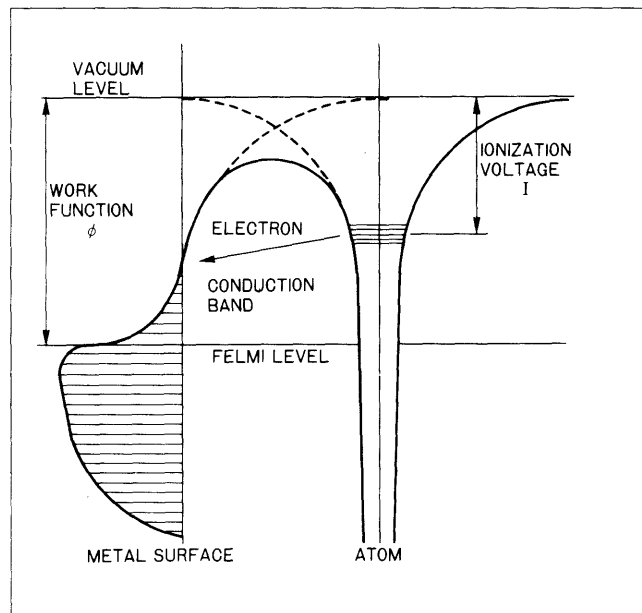


図3 エネルギー準位

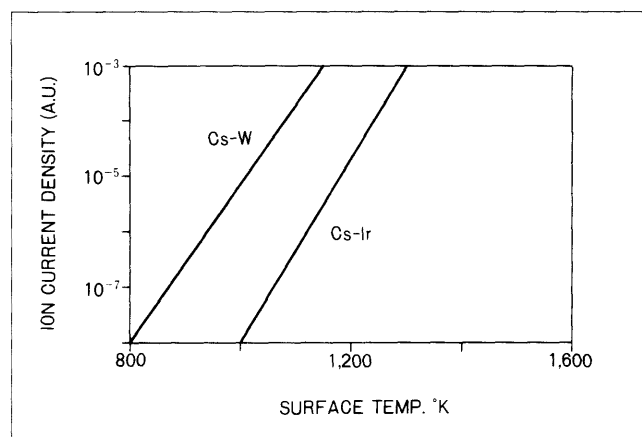


図4 温度-電流密度特性

である。以上の如く、表面電離法は、 $\Phi > I$ の条件を満たす元素のイオン化に適し、古くからアルカリ金属(Li, Na, K, Rb, Cs)のイオン化に用いられている技法である。図4はCsとW, CsとIrの組合せにおけるイオン電流密度の温度I依存性を示す。

2.2 Csイオン源の構造と動作原理

今回開発した表面電離形Csイオン源は、図5に示す如く、チップ、フィラメント、引出電極、後段加速電極および各種電源から構成する。チップはTa製スリーブで、Csイオン放出口径を規制するオリフィス、ポーラスW製イオンエミッタ、ガス流量規制オリフィスおよびイオン化原料を装備している。イオン化原料は、塩化セシウム(CsCl)で充填密度を上げるため微粉末をプレス、ペレット状にして用いている。イオンエミッタは、フィラメントからの電子衝撃により1200°C以上に加熱される。この熱にて気化したイオン化原料CsCl(融点647°C)は、気化しオリフィスを介してイオンエミッタ部へ流入する。Cs原子(イオン化電圧

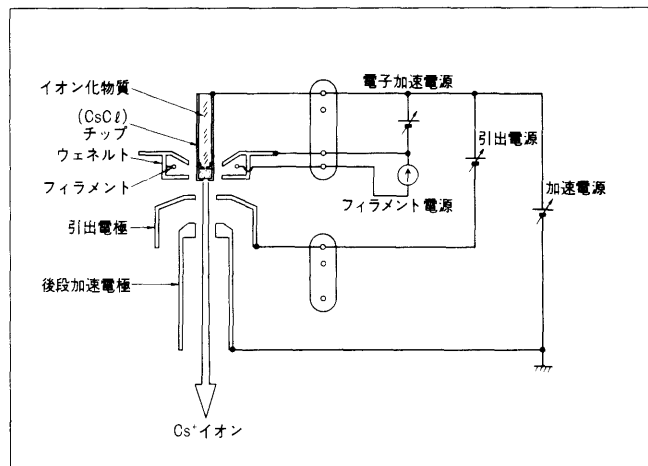


図5 Csイオン源の構成

3.89eV)は、W(仕事関数4.5eV)表面から蒸発し電離してCs⁺イオンとなる。Cs⁺イオンは引出電極、後段加速電極によって引出し、加速され、収束部を介して試料に照射する。

2.3 ホロカソードイオン源への組替

先に述べた如く、一次イオン種としてCs⁺を用いると電気陰性元素の負の二次イオンイールドが増大し、O⁻またはO₂⁻を用いると正の二次イオンイールドが増大する。このため両者を併用することにより、ほとんどすべての元素を高感度で検出することができる。本イオン源装置では、イオン源ハウジングを共用化し、表面電離形Csイオン源と改良形ホロカソードイオン源との選択が、最小単位で組替できる構造設計とし、組替の煩雑さを避けている。

3. Csイオン源の特長

3.1 高感度

Cs一次イオンは電気陰性元素の負の二次イオンイールドを増加させ、高感度化できることを既に述べた。本イオン源では、試料上にて4μA以上の大電流が得られ、微量不純物の高感度分析ができる。

3.2 微小領域の分析

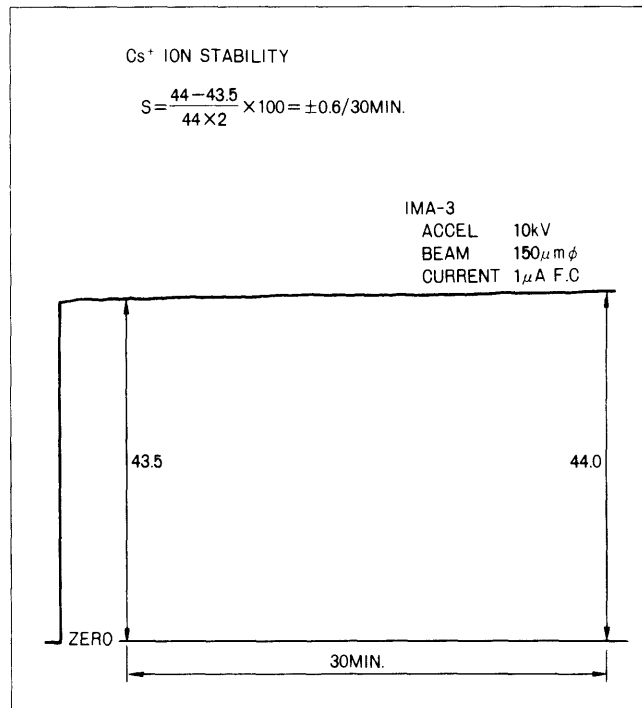
本イオン源では、ソース径が小さいこと、引出電極がレンズ作用を有していることなどにより、試料上でCs⁺一次イオンビームをミクロンオーダーまで細束化できる。これにより、従来ほとんど不可能であった電気陰性元素の微小領域の分析が可能となり、今後の応用が期待される。

3.3 一次イオンピュリティ

表面電離法では、イオンエミッタの仕事関数より小さなイオン化電圧の元素のみを選択的にイオン化する。このためイオン化電圧の高い hidroカーボンや他の有機化合物イオンが混入することがなく、高純度のCs一次イオンが得られる。

3.4 高安定度

図6は、一次イオン加速電圧10kV、一次イオンビーム径φ150μm、Cs一次イオン電流が試料ホルダのファラディカップ法にて1μAのときの電流安定度を示すものである。±0.6%/30minと高い安定度が得られる。

図6 Cs⁺一次イオン電流安定度

3.5 操作性

図4に示すように、表面電離を効率良く行うためには、イオンエミッタおよびイオン化原料の最適温度への設定、それらのタイミングをとることなどが必要である。本イオン源では、自動昇温回路により、自動設定を行い操作性を大幅に向上させている。

3.6 安全性と保守性

Csは、アルカリ金属で、特に水と厳しく反応し発火する。このため火傷や火災を防止するため乾燥Ar気中で取り扱うか、液体窒素で凍結させて扱うのが常である。本イオン源では、イオン化原料として塩化セシウム(CsCl)を用いている。CsClは、NaCl(食塩)と同じ性質を有し、直接、手で触れても安全である。このため、イオン化原料の充填、イオン源クリーニングなど机上で行えるため保守性にも優れている。

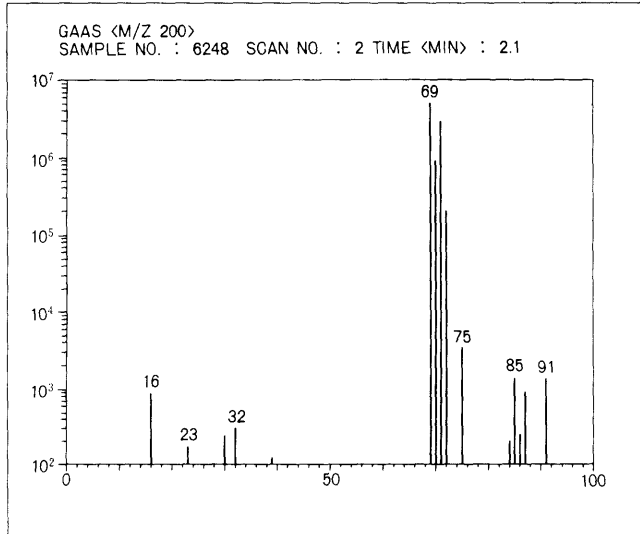
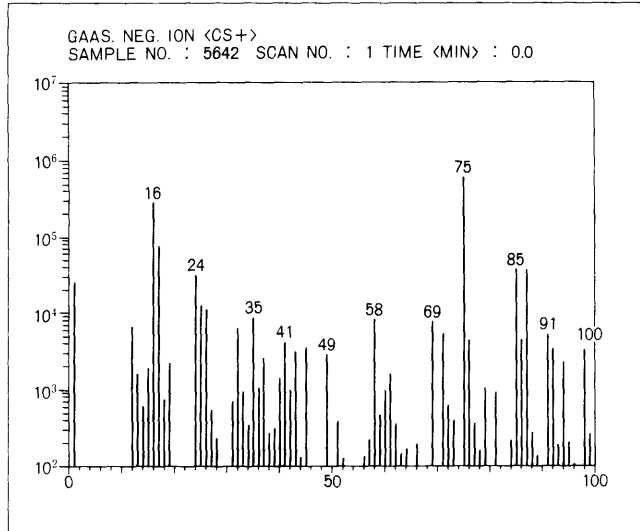
4. 応用例

4.1 GaAsのマススペクトル

図7は、改良形ホロカソードイオン源のO₂⁺一次イオンビームを用いたGaAsウェーハの正の二次イオンマススペクトルである。Gaに対しAsの強度が約3桁低く、図1に示した二次イオンイールドの違いを表しているのがわかる。図8は、Cs⁺一次イオンビームを用いたGaAsウェーハの負の二次イオンマススペクトルである。O₂⁺一次イオンの場合と異なり、Asがベースピークとなり、Asの検出感度が大幅に向上したことがわかる。

4.2 Si中のAsの分析

GaAsウェーハの分析例から、Cs一次イオン照射によってAsの感度が大幅に向上することがわかった。その効果を実サンプルにてテストした。図9はSiウェーハにエネルギー80keV、ドーズ量1×10¹⁴Atom/cm²でAsをイオン注入

図7 O₂一次イオンによるGaAsの正イオンスペクトル図8 Cs⁺一次イオンによるGaAsの負イオンスペクトル

した試料の深さ方向分析結果を示す。イオン注入条件よりX軸を深さにY軸を濃度に座標変換している。図9のデプスプロファイルからAsの検出限界は 10^{14} Atom/cm³ (ppbオーダー) となることがわかる。分析条件は、一次イオン電流安定度を測定した時と同じ条件である。

4.3 GaAs中のSiの分析

図10は、GaAsウェーハにエネルギー35KeV、ドーズ量 1×10^{15} Atom/cm²でSiをイオン注入した試料のSiのデプスプロファイルを示す。広いダイナミックレンジが得られ検出限界は 10^{15} Atom/cm³以下となることがわかる。Asの場合もSiの場合も、O₂一次イオンによる分析結果と比較し2～3桁感度向上しており、Csイオンの有効性を示している。

4.4 Niメッシュの二次イオン像

Cs一次イオンビームを細く絞り、試料上をラスタ走査することにより、二次イオン像表示することができる。図11は、Ni250メッシュ(線幅20μm)の全二次イオン像である。

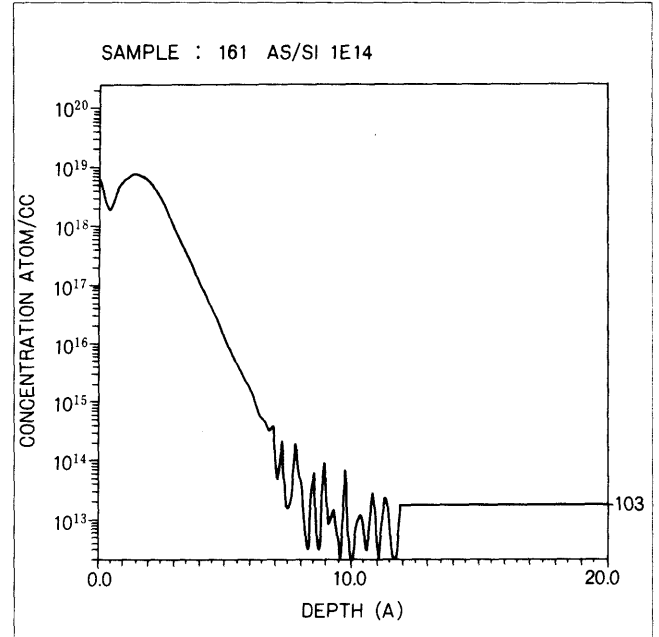


図9 Si中のAsの深さ方向分析

線幅20μmの $\frac{1}{20}$ の点が判別できることから、Cs一次イオンビームは、1μm領域まで絞られていることがわかる。この像の測定条件は一次イオン加速電圧15kV、試料電流1nA、走査速度20S/フレームである。

CRTに表示した像に十字カーソルを重畳させ、カーソル交点(任意設定可)に一次イオンビームを固定し、ポイントアナリシスを行うことができる。この場合の検出感度は、試料電流1nAからSi中のAsの場合で 10^{17} Atom/cm³ (ppmオーダー) となることがわかる。

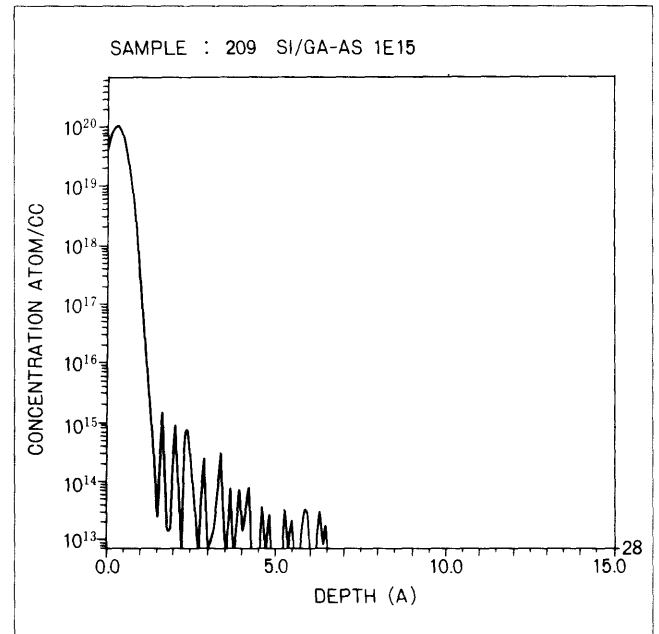


図10 GaAs中のSiの深さ方向分析

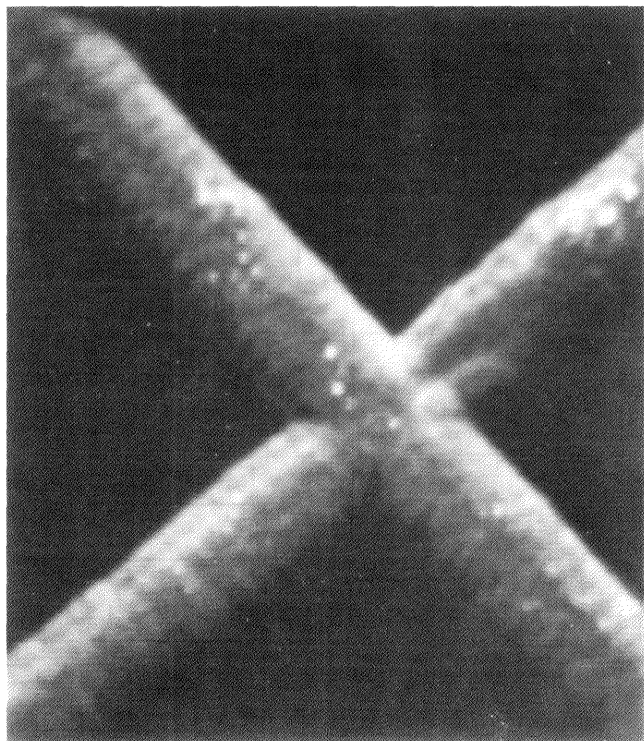


図11 Ni250メッシュの全二次イオン像

5. おわりに

以上、IMA-3用のCsイオン源の概要、特長および応用例の一部について記述した。Csイオン源の開発により、エレクトロポジティブな元素とネガティブな元素の高感度分析に対応できるようになった。今後更に広い分野でIMA-3が役立つことを期待している。

最後に、表面電離形イオン源のイオンエミッタ部の設計および製作に御尽力頂いた株式会社日立製作所茂原工場ブラウン管設計部の谷口主任技師、小金沢氏および同生産技術部出川主任に対し心から感謝の意を表す次第である。

参考文献

- 1) H.A.Storms et al.: Anal. Chem. 49. 2023(1977)
- 2) 田村一二三: 金属, 臨時増刊号(1984.5)
- 3) 泉栄一, 他: ISIAT'84. 第8回シンポジウム p.541 (1984)
- 4) 泉栄一, 他: 学振141委, 第12回ローカルミーティング資料(1984)
- 5) 加藤義昭, 他: The Scientific Instrument News. Vol. 27, No.2(1984)
- 6) E. Izumi et al.: Proceedings of International Conference. SIMS IV Springer-Verlag. Berlin. (1983)

Topics

第24回プラズマ分光分析及び第50回原子スペクトル分析研究懇談会・講演会開かる

3月24日(月)上記講演会が東京大学で開催された。特に今回は東大の不破教授、三重大の鈴木教授、立教大の中埜教授、東大の早野教授及び宇都宮大の酒井教授の定年退官記念講演が行われた。先生方は戦後の機器分析の開花時に青春を送られ、機器分析の発展とともに生きてこられた。というよりも先生方の歩みそのものが機器分析の発展といってもよいであろう。不破先生はハーバード大学での超微量分析を中心に、鈴木先生は国内での先駆的な原子吸光分析の苦労話を、中野先生は電気化学と原子吸光の組合わせを、早野先生は海洋汚染とスミン酸について、それぞれ話され出席者に多大の感銘を与えられた。酒井先生は卒業式と

重なり御出席頂けなかったのは残念であった。筆者の感傷になるかも知れない今、一つの時代が過ぎ去ったとの感慨が深かった。(伊田和雄記)

第5回生命・細胞・電子顕微鏡講演会開かる

生命・細胞・電子顕微鏡
第5回講演会
開催日時: 3月25日(火) 午後2時~4時
* "Cryo-Preparation for Transmission Electron Microscopy"
Main Subject: Freeze Etching
H. Müller (ETH & Balzers AG)
* 講演会からの報告書へ
三浦謹一郎 (東京大学 工学部)



去る3月25日、本講演会が日本女子大学(東京・目白)において開催された。本年度5周年を迎えた本講演会は、

日本女子大学電子顕微鏡施設運営委員会が主催するもので、電子顕微鏡を中心とした医学・生物分野で、その年に話題になった新しい技術や、その分野での著名な方の研究成果が紹介される。今年度は招待講演として、スイス、バルツァース社のミュラー博士による"Cryo-Preparation of TEM: Freeze Etching"と、東京大学工学部の三浦謹一郎博士による「遺伝子から蛋白質へ」の2題が紹介された。

参加者(約12人)には、大学、民間の研究所の第一線で活躍されている専門家の方が多く、実際に電子顕微鏡により、1個の細胞の中から生命の本質をきわめてゆく研究者に、大きな夢と期待をもたせてくれた内容であった。

同時に、学内の電子顕微鏡施設の公開実演が行われ、日立S-800高性能FE SEM, 200kV日立H-800TEMをはじめ、国内でただ1台設置されているバルツァース500K形高真空フリーズエッチング装置や、画像処理ルーゼックS5000など最新鋭装置が紹介された。(那珂工場・応用技術センタ 渡部忠雄)

U.D.C. 681.323.076-181.48 : 621.385.833.28.087.9

SEM用イメージプロセッサ EP-1050

HITACHI Model EP-1050 Image Processor for Scanning Electron Microscope

大野 輝昭* 片桐 信二郎*

1. はじめに

走査形電子顕微鏡（以下、SEMと略す）は従来、モニタ用ブラウン管を、試料上を走査する電子線と同じ周期で走査することにより二次電子像を表示していた。この方法では、スロースキャンの場合、静止画が得られないため観察しにくく特別の暗室を必要とした。またTVスキャンで観察しようとすると像のS/Nが悪く、S/Nを上げようとしてプロンプ電流を増大させると試料ダメージ、コンタミネーション等の問題が発生した。

このような問題点を解消するためには、フレームメモリにスロースキャンのS/Nの良い像を記憶させ、その内容を常時TVレイトでモニタに表示させればよい。フレームメモリに一旦像を記憶させれば、それ以後試料に電子線を当てなくてもよく、試料ダメージの軽減が図れる。またフレームメモリを使用すれば、コンピュータと接続することにより画像処理への応用が容易となる。

今回、フレームメモリとマイクロプロセッサから構成されるSEM用イメージプロセッサEP-1050を製品化した。半導体分野向けの測長機能が充実している。またフロッピーディスク装置による画像のデジタル保存も実現させている。

2. 仕様と特長

表1にイメージプロセッサEP-1050の仕様を示す。フレームメモリ部は512×480画素、グレースケール128階調のものを2面備えている。グレースケールに関しては目視で64階調以上あれば実用的と言われており、128階調あれば十分と考える。SEMからの像の記憶条件は、1フレーム2秒以上のスロースキャンのみとした。測長に関しては、一次微分のエッジ検出法による自動測長機能を備えている。また8インチフロッピーディスク装置を2基搭載しており、画像のデジタル保存が可能となっている。フロッピーディスク・フォーマットはIBMフォーマットとし、ミニコンピュータ、大型コンピュータでも読み取り可能とした。

表2に主な特長をまとめて示した。

3. 測長機能

3.1 手動測長

フレームメモリのモニタTVへの内容表示に、カーソル線と文字の表示をスーパーインポーズすることにより、寸法の手動測長を可能とした。図2に示すように、横方向2本、縦方向2本のカーソル線が現われ、これらのカーソル線はスイッチにより自由に移動が可能である。平行するカーソル線間の画素数およびこの値に定数を乗じた実際の長



図1 イメージプロセッサEP-1050外観
(横形CRT, プリンタオプション付)

さがミクロン単位でモニタTV上に表示される。

寸法校正は、寸法既知の標準サンプルの像を記憶させ、それを上記カーソル線で挟み込み、その寸法を入力する方法とした。校正条件は、バッテリバックアップのメモリに記憶している。

3.2 自動測長

像の輪郭部を自動的に検出して、ICのパターン幅等を測定する機能が備えてある。

自動測長は表3に示すパラメータを基に行なわれる。各パラメータの詳細を次に示す。

(1) DIRECT (測長方向)

自動測長は縦方向に表われる2本のカーソル線を基準に行なわれる。このパラメータは、この基準線に対してエッジ検出する測長方向を定める。

表4のように4種類の設定が可能であり、このパラメータによりICのライン幅、スペース幅、ピッチの測定が可能である。

(2) EDGE

像のエッジ部を検出する場合、そのエッジが立ち上がりなのか立ち下がりなのかを指定する。

(3) ΔX , ΔY , THRESH.

以下にこれらのパラメータについてその効果を示す。

(1) ΔX

通常の像では $\Delta X = 2$ で使用するが、像のコントラストが弱くて、パラメータTHRESH.の値を3～6程度に小さくした場合は、 $\Delta X = 3 \sim 4$ にしないとデータがばらつく。

図3は低コントラスト像の例で、

$\Delta X = 2 \rightarrow$ 検出点がばらついていて、

$\Delta X = 3 \rightarrow$ かなりエッジ部をとらえている。

$\Delta X = 4 \rightarrow$ エッジ部を正しくとらえている。

* 日立那珂精密株式会社 設計部

表1 仕様

画像メモリ	画素数	512×480
	グレイスケール	128
	フレーム数	2面(1面は4分割可能)
	記憶条件	水平走査: 4, 20, 40msec 垂直走査: 500, 1000, 2000, 4000本
画面間演算		加算, 減算, 極性反転, 移動
画像表示		TVスキャン, 12"グリーンCRT
測長	手動:	カーソル方式
	自動:	エッジ検出方式
	測長表示:	デジタル
	測長範囲:	500nm~1.5mm
測長精度:		±5%以内 (試料傾斜角 0°)
校正:		縦横独立に可能
測長条件:		5条件まで登録可能
フロッピーディスク	サイズ:	8インチ
	ドライブ数:	2
	記録方式:	両面倍密度
	セクタ容量:	256バイト
セクタ数:		26セクタ/トラック
トラック密度:		48TPI
シリンダ数:		77
フォーマット:		IBMフォーマット準拠
記憶容量:		4画面/枚(1MB)
スキャンスピード検知		自動
電源		AC100V(±10%), 50/60Hz 約300W
大きさ		55cm(W)×72cm(D)×116cm(H)
重量		約60kg
オプション		・プリンタ ・カセット磁気テープ装置

使用できるSEMのスキャンスピード

SEM	使用可能スキャンスピード	
S-510	10(8.5) sec	☐
	PHOTO 80(65) sec	☐
S-530	2 sec	☐
	20(17) sec	☐
	PHOTO 80(65) sec	☐
S-570	10(8.5) sec	3
	PHOTO(2) 80(100) sec	
S-520 S-800 S-806	10(8.5) sec	3
	PHOTO(2) 80(100) sec	
S-430 S-450	10(8.5) sec	☐
	PHOTO(2) 100(88) sec	

50Hz(60Hz)

表2 特長

	特長	手段
1	S/Nの良い静止像観察	(1) フレームメモリによるスロースキャン像の記憶, TVスキャン表示 (2) ソフトウェアによるS/N改善 (3) ハードウェアによるS/N改善
2	試料ダメージ, コンタミネーションの軽減	フレームメモリによる像の記憶
3	測長機能 (主に半導体向け)	(1) 手動測長(カーソル方式) (2) 自動測長(一次微分法)
4	画像の記録	(1) 写真撮影(アナログ) (2) フロッピーディスク(デジタル) (カセット磁気テープ)

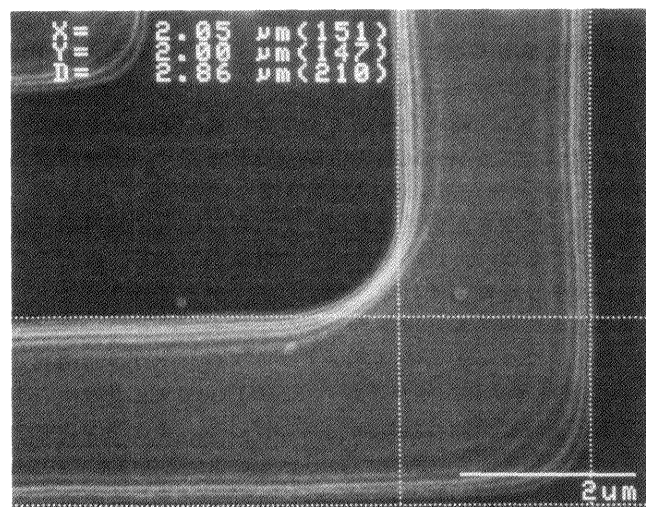


表3 自動測長パラメータ

パラメータ名	意味
DIRECT	測長方向
EDGE	エッジ極性
ΔX	微分パラメータ (コントラスト・パラメータ)
ΔY	微分パラメータ (ノイズ・パラメータ)
THRESH.	微分パラメータ (スレショルド)
ROT.C.	回転補正

となり, ΔX の効果が如実にうかがえる。

それは, THRESH.の値が小さい場合, ΔX の値が小さいと像のエッジ以外の小さな山を検出してしまうためと考える。コントラストが低い場合は, ΔX の微小領域を広くとらないとノイズを拾ってしまうということである。

(2) ΔY

縦方向のスムージングのパラメータであり, 低加速時のように像のノイズ成分が多い場合は ΔY の値を大きくする必

表4 DIRECTパラメータの表示と測長方向を示す。

表 示	> <	< >	< <	> >
測 長 方 向				
応用例	ライン幅	スペース幅	ピッチ	ピッチ

要がある。ただし、 ΔY の値が大きいと検出点の数は減少する。

図4に ΔY の効果の具体例を示す。低加速電圧の比較的高ノイズの多い像である ΔY の値を増大させると、検出点が安定する様子が見えてくる。図5に ΔY の値を変化させた場合のラインプロファイルを示した。この像では $\Delta Y=16$ にすることによりラインプロファイルがかなり滑らかになっていることがわかる。ただし、被測定物が垂直に配置されない場合は、 ΔY の値を大きくすると像の輪郭部がぼけるので注意を要する。

(3) THRESH.

エッジ部の傾き（微分値）を決定するパラメータであるので、エッジ部の像のシャープさ、およびコントラストに依存する。通常のコントラスト像の場合は、THRESH.=8～15程度で使用可能であるが、像のコントラストが低い場合（無蒸着レジスト：パターン像の場合など）は、小さい値に設定しなければならない。

図6にTHRESH.の効果の具体例を示す。THRESH.の値が小さ過ぎると検出点がばらつき、大き過ぎると見つけ

て欲しい検出点を逃がしている様子が見える。

(4) ROT.C.（回転補正）

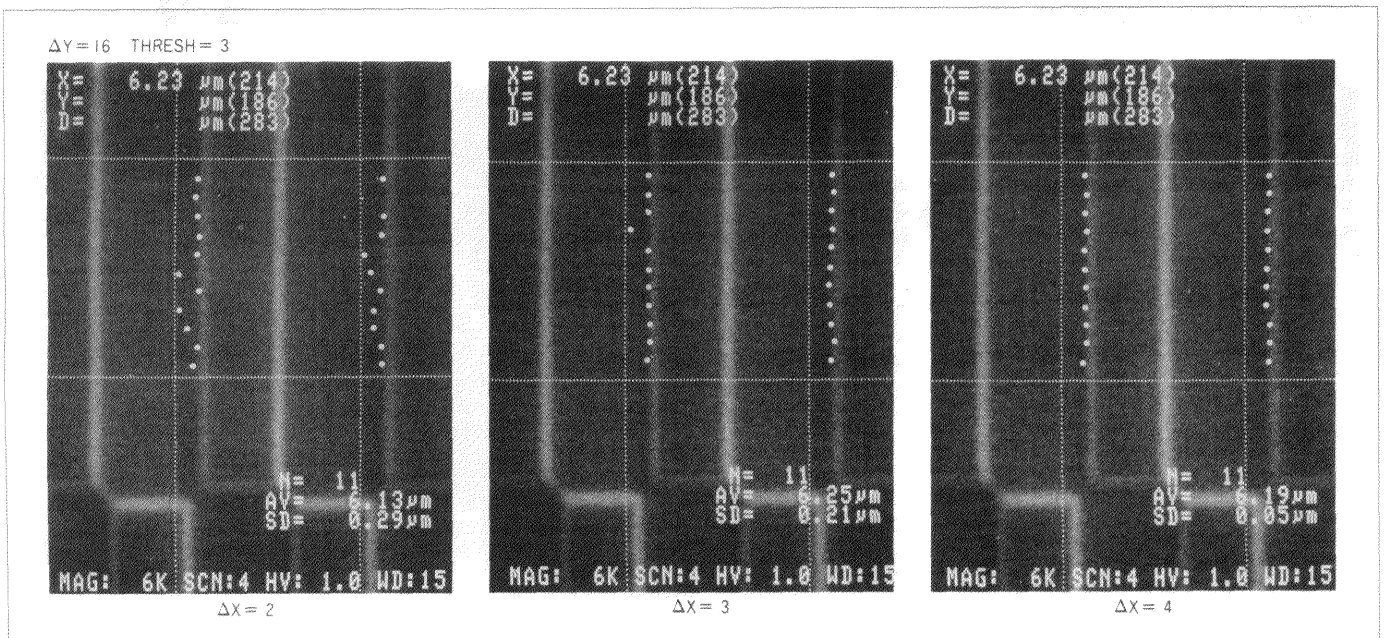
被測定物（例えばICパターン）が図7に示すように垂直に置かれていない場合、通常の自動測長では L の長さを測定する。被測定物の実際の幅は L' で示され、 L と L' の間には次式の関係がある。

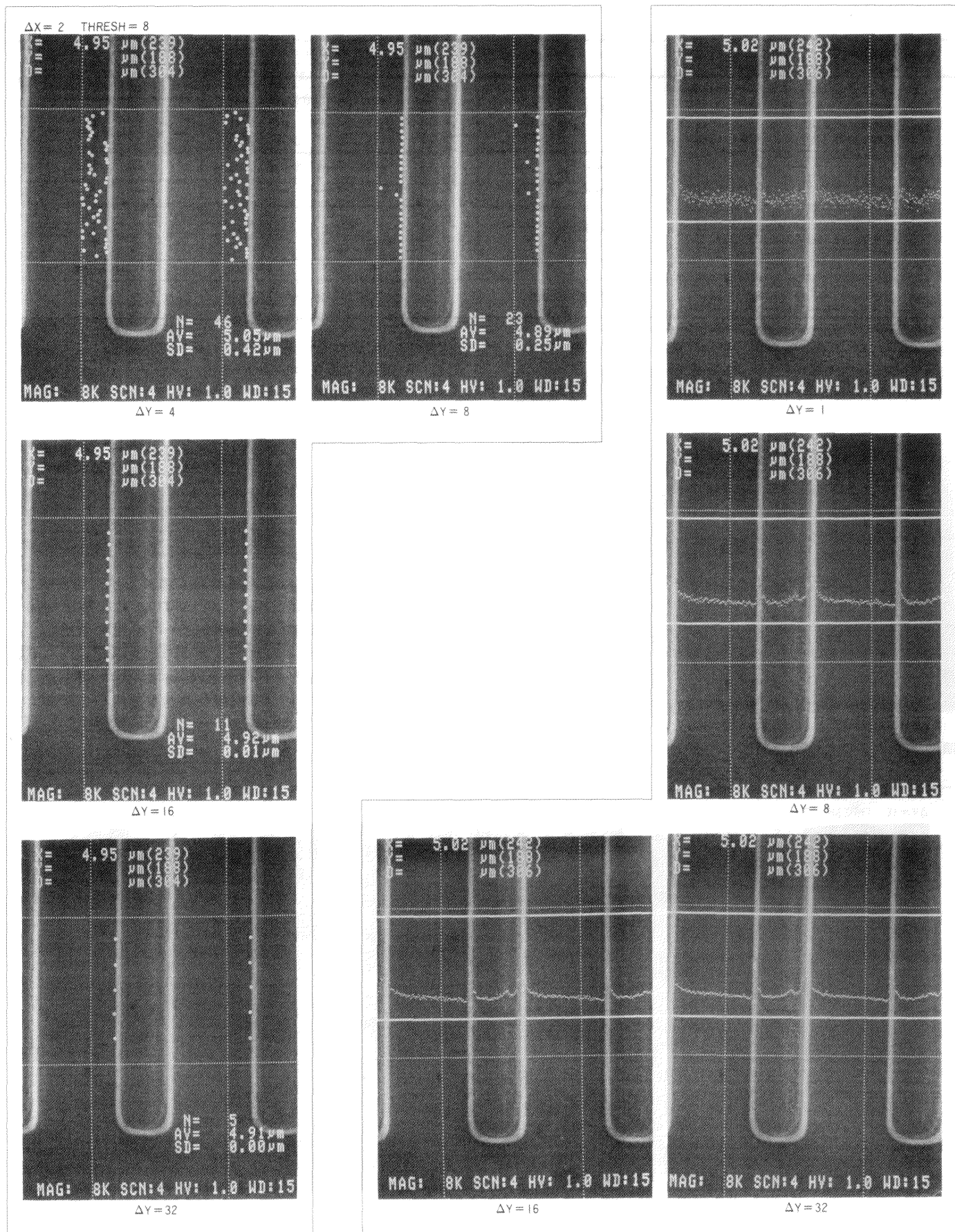
$$L' = L \cdot \cos \theta$$

コンピュータにより L と $\cos \theta$ の値を計算し、 L' を求めることができる。

4. 応 用 例

図8～図13は、鉄隕石（試料名：オデッサ）をS-530形SEMと試料加熱装置を用いて約1000℃まで加熱した例である。オプションのカセット磁気テープ装置を使用し、加熱途中の二次電子像を順次デジタルの形で保存した。実験終了後、カセット磁気テープを再生して、モニタTV上に像を表示し、必要なものは写真撮影機能を使用して写真にした。図8～図13の写真は全てこのようにして撮影したものである。

図3 ΔX の効果

図4 ΔY の効果(1)図5 ΔY の効果(2)

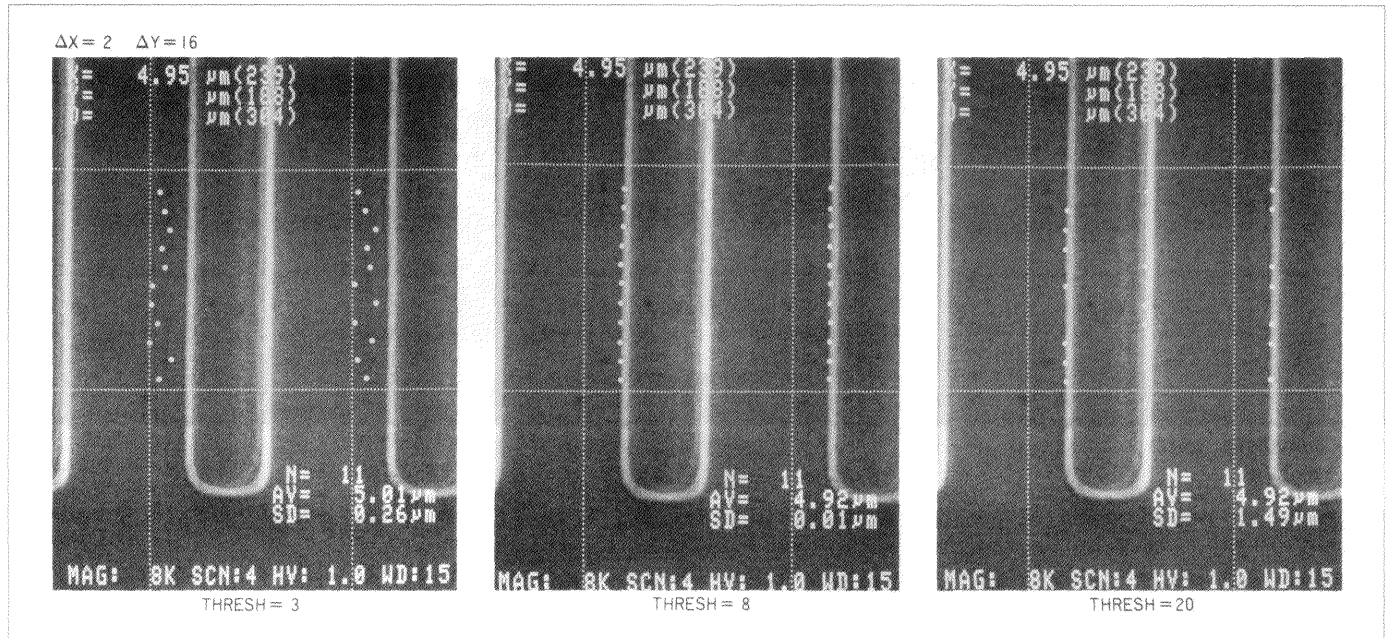


図6 THRESHの効果

このようにイメージプロセッサを使用すると、いちいち写真撮影をしなくても変化途中の像を惜しげなくフロッピーディスクなりカセット磁気テープに取り込むことができ

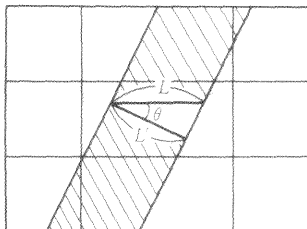


図7 回転補正説明図 測定値はL, L'は補正後の幅を示す。

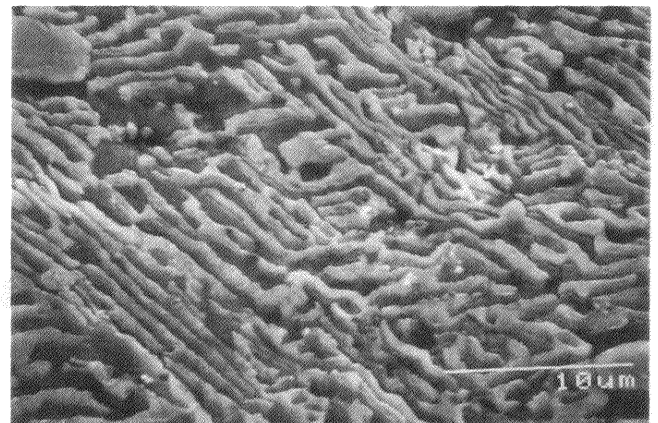


図9 鉄隕石表面 (850°C)

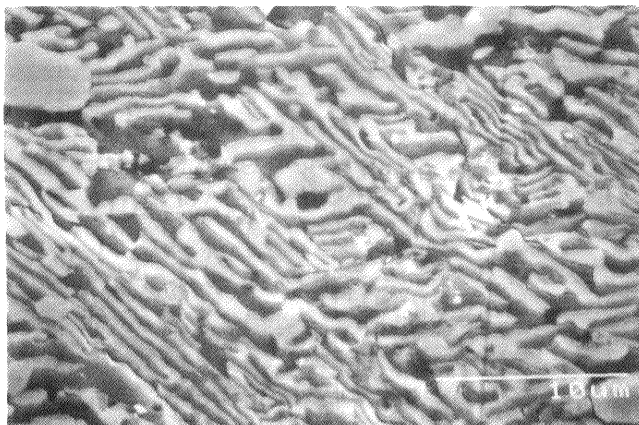


図8 鉄隕石表面 (300°C)

(図8～図13資料御提供：京都大学・理学部 北村雅夫先生)

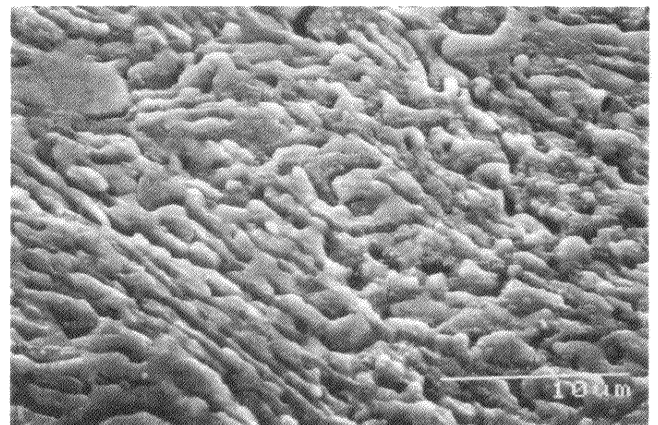


図10 鉄隕石表面 (1000°C)

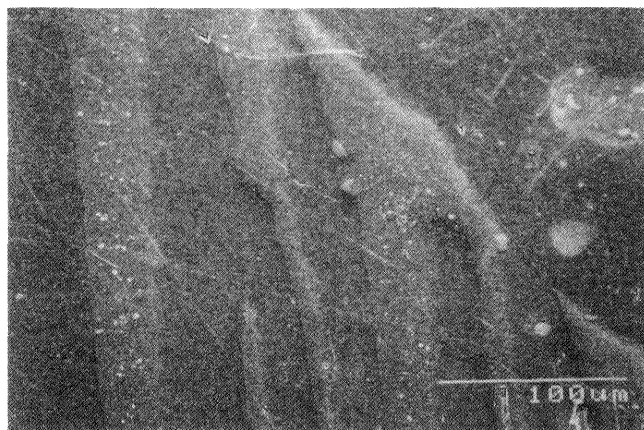


図11 鉄隕石内部 (300°C)



図13 鉄隕石内部 (1000°C)

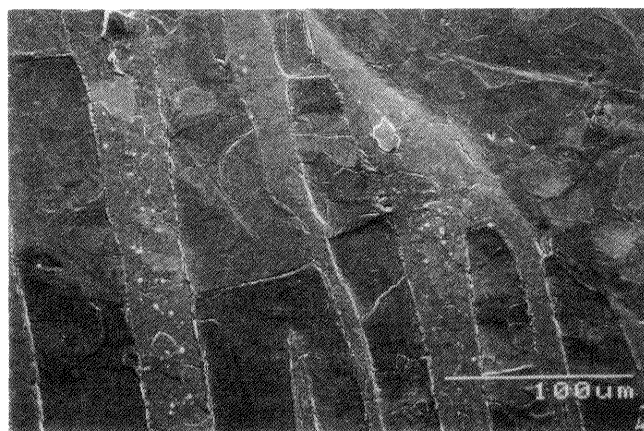


図12 鉄隕石内部 (950°C)

る。また必要に応じて、読み出し、消去および写真への再生が可能である。

5. おわりに

フレームメモリおよびマイクロコンピュータを搭載したSEM用イメージプロセッサを開発した。フレームメモリの採用により高精細度の静止画像が観察でき、試料のダメージ・コンタミネーションが減少する。また半導体関連を意識した測長機能を備え、フレームメモリの効果と合わせて低加速電圧時でのパターン幅測長に有効である。また密度の高い写真撮影機能とフロッピーディスク装置およびカセット磁気テープ装置による像のデジタル保存の機能を持ち、従来の写真撮影のみによる像の保存の考えが一新されるものと思われる。

日製産業株式會社

本社 電話 東京(03) 504-7211
 水戸営業所 電話 水戸(0292)32-0112
 新潟営業所 電話 新潟(0252)41-3011
 名古屋支店 電話 名古屋(052)583-5841
 四国営業所 電話 高松(0878)62-3391
 九州支店 電話 福岡(092)721-3501

札幌支店 電話 札幌(011)221-7241
 筑波営業所 電話 土浦(0298)23-7391
 北陸営業所 電話 富山(0764)24-3386
 京都営業所 電話 京都(075)241-1591
 岡山営業所 電話 倉敷(0864)25-1316
 沖縄出張所 電話 那覇(0988)78-1311

仙台支店 電話 仙台(022)264-2211
 横浜営業所 電話 横浜(045)671-5421
 豊田営業所 電話 豊田(0565)28-5191
 大阪支店 電話 大阪(06) 366-2551
 広島支店 電話 広島(082)221-4514

<編集後記>

- 本号は、ナノテクノロジー、即ちナノメータオーダの性能を追求する技術の特集として編集しました。
- 藤田先生には、新開発の300kV超高分解能電子顕微鏡の設計上の諸問題と、性能の評価、並びに観察例について報告して頂きました。
- 山田先生には、多孔質ガラスの骨格構造をSEM、およびTEMを用いて観察した例について報告して頂きました。
- 近藤先生には、SEMを用いてマウスの受精の過程を観察した例について報告して頂きました。

- 日立科学機器による報文のご投稿を歓迎致します。
- 本ニュースに関するお問合せは、下記へ、または、日製産業株式会社の上記各事業所へご連絡ください。
- 株式会社 日立製作所 那珂工場 応用技術センタ
 茨城県勝田市市毛882番地
 〒312 電話 水戸(0292)73-2111(代)
- 日製産業株式会社
 科学機器営業本部 企画開発部
 東京都港区西新橋1-24-14
 〒105 電話 東京ダイヤルイン(03)504-7187

THE HITACHI SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS SUMMER 1986 Vol.29 No.2

発行 昭和61年7月1日(年4回発行)
 発行人 岡本匡史
 編集人 永谷 隆 岩井孝之
 発行所 株式会社 日立製作所 計測器事業部 科学機器部
 〒100 東京都千代田区丸の内1-5-1新丸ビル
 電話 東京(03)214-3123(直通)
 印刷所 日立印刷株式会社