OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	超高圧電子顕微鏡用並列検出電子エネルギー損失分光系に関する研究
Author(s)	吉田, 清和
Citation	大阪大学, 1992, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3063592
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

超高圧電子顕微鏡用並列検出電子エネルギー損失分光系に関する研究

平成４年４月

吉　田　清　和

内 容 梗 概

本論文は、超高圧電子顕微鏡用並列検出電子エネルギー損失分光法（Electron Energy Loss Spectroscopy（ＥＥＬＳ））の実用化のための、超高圧電子顕微鏡の改良および並列検出器の開発に関する研究をまとめたものであり、論文は８章から構成されている。

第１章において、並列検出電子エネルギー損失分光法が、超高圧電子顕微鏡の最大の特徴である「その場観察」に必要である理由を述べ、その研究の歴史、現状および問題点について述べ、本論文の位置づけを行なっている。

第２章において、本装置の電子幾何光学的考察を行う。まず、透過電子顕微鏡として設計された超高圧電子顕微鏡を、透過走査電子顕微鏡（ＳＴＥＭ）として用いるための照射・結像レンズ系の動作条件を決めるための軌道解析を行う。つぎに、並列検出ＥＥＬＳに用いる高分散、かつ、可変分散の分光器の設計と製作を示す。そして、ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳとして動作させた場合の電子幾何光学系のエネルギー分解能を示す。

第３章において、超高圧ＳＴＥＭのプローブビームの安定化について述べる。ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳではプローブビームのエネルギー変動が小さく、かつ位置変動の小さいことが重要である。そのために、加速電圧そのものの安定化のための、商用電源の安定化、加速電圧安定化回路の負帰還回路定数の適正化について述べる。また、外部回路からの漏洩磁束による電子ビームの偏向の変動量とその補償法について述べる。

第４章において、残存する加速電圧の変動やビーム位置変動をスペクトルの検出時に補償する方法について述べる。これらの変動成分は検出時のＥＥＬＳのスペクトル位置を変動させる。この変動成分を補償するため、検出器の前に置かれた偏向コイルに打ち消し用の逆位相電流を印加し、さらに、スペクトル位置変動量を検出して偏向板に帰還制御する。位置変動の検出とスペクトル測定が同時にできる蛍光板について述べ、この帰還回路にビーム電流のショット雑音を含むため、帰還量に最適値があることを示す。また、開ループ制御と帰還制御によるエネルギー分解能の改善について、実測値と解析値を比較する。

第５章において、並列検出器の構造とその特性について述べる。特に、蛍光板

の特性が重要であり、電子線スペクトル強度分布を忠実に、かつ、効率よく光強度に変換するものでなければならない。蛍光面での発光領域幅が異常に広がる現象、ならびに、発光効率に対する蛍光体材料、蛍光板厚さ、支持構造の依存性を調べる。さらに、発光領域での広がりを抑制した蛍光板の開発について述べる。

第６章において、検出系を評価するための検出量子効率（ＤＱＥ）が、並列検出器では、各チャンネルの信号が蛍光板などで混合される「チャンネルミキシング効果」のために、１を越える場合があることを理論と実験によって示す。さらに、並列検出法の信号記録系と、検出器素子間の感度補正をはじめとする信号処理について述べる。

第７章において、試作した分光器の分散について測定し、設計値と比較する。まず、この分光器の電子光学的分解能を直列検出法で測定する。つぎに、並列検出器の分解能、測定時間を測定し、並列検出系の優位性を示す。最後に、この装置を用いて測定したＥＥＬＳスペクトルの例を示す。

第８章において、得た成果をまとめ、今後の課題について述べる。

目　　次

第１章　序論　・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
1-1　超高圧並列検出ＥＥＬＳの必要性と現状　・・・・・・ 1
1-2　問題点と本論文の関係　・・・・・・・・・・・・ 3
1-3　本論文の構成　・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5

第２章　超高圧ＥＥＬＳの電子光学系の設計と製作　・・・・・・ 7
2-1　まえがき　・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 7
2-2　ＳＴＥＭモード動作のための軌道解析　・・・・・・ 7
2-3　分光器の軌道解析　・・・・・・・・・・・・・・・・ 14
2-3-1　高分散分光器の設計　・・・・・・・・・・・・・ 14
2-3-2　可変高分散分光器への改造設計　・・・・・・・・ 24
2-4　分光器のエネルギー分解能　・・・・・・・・・・・・・ 24
2-5　分光器の製作　・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 28
2-6　むすび　・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 28

第３章 超高圧ＳＴＥＭのプローブビーム安定化　・・・・・・ 29
3-1　まえがき　・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29
3-2　加速電圧の安定化　・・・・・・・・・・・・・・ 29
3-2-1　自動電圧安定器による電源の安定化　・・・・ 29
3-2-2　負帰還ループによる安定化　・・・・・・・・ 32
3-3　洩れ磁束によるビーム偏向の補償　・・・・・・・ 34
3-3-1　原因と周波数成分　・・・・・・・・・・・・・・ 34
3-3-2　フィラメント直流点火による改善　・・・・ 35
3-3-3　鏡体部での振り戻しによる改善　・・・・・・・・ 35
3-4　偏向成分を含むときのビーム径の測定法　・・・・ 38
3-5　むすび　・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 40

第４章　並列検出ＥＥＬＳにおける加速電圧変動の負帰還補償 ・ 41
4-1　まえがき ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 41
4-2　補償回路の構成 ・・・・・・・・・・・・・ 41
4-3　開ループ制御特性 ・・・・・・・・・・・・ 43
4-4　帰還制御特性 ・・・・・・・・・・・・・・ 44
4-4-1　検出系 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 44
4-4-2　特性測定 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 47
4-4-3　ショット雑音を含む制御系の解析 ・・・・・ 49
4-5　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 53

第５章　蛍光板における発光領域の異常広がり効果 ・・・・・ 55
5-1　まえがき ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 55
5-2　並列検出法のための光学系と検出器の構造 ・・・・・ 55
5-3　蛍光板発光領域の異常広がり効果 ・・・・・・・ 57
5-4　蛍光板支持基板による後方散乱効果 ・・・・・・・ 62
5-5　発光領域の広がり抑制蛍光板 ・・・・・・・・ 65
5-6　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 68

第６章　並列検出器におけるチャンネルミキシング効果 ・・ 69
6-1　まえがき ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 69
6-2　チャンネルミキシング効果による検出量子効率の変化 69
6-3　並列検出法の信号記録系と信号処理 ・・・・・ 79
6-3-1　信号記録系 ・・・・・・・・・・・・・・ 79
6-3-2　並列検出ＥＥＬＳに必要な信号処理 ・・・・ 80
6-4　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 86

第７章　試作超高圧並列検出ＥＥＬＳ装置の特性測定と応用 ・・ 87
7-1　まえがき ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 87
7-2　分光器の分散 ・・・・・・・・・・・・・・・ 87
7-3　エネルギー分解能 ・・・・・・・・・・・・・ 89
7-4　空間分解能、エネルギー分解能と測定時間 ・・・ 91
7-5　超高圧並列検出ＥＥＬＳの応用例 ・・・・・・ 95
7-5-1　試料温度とコンタミネーション ・・・・・ 95
7-5-2　スペクトルの測定例 ・・・・・・・・・・ 95
7-6　むすび ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 98

第８章　結言 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・100

謝辞 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・103

参考文献 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・104

関連発表論文 ・・・・・・・・・・・・・・・・・110

付録Ａ　HU-2000 型電顕のＳＴＥＭ動作の軌道計算 ・・・・112
付録Ｂ　使用記号一覧表 ・・・・・・・・・・・・・116

第１章　序論

１－１　超高圧並列検出ＥＥＬＳの必要性と現状

電子顕微鏡法（電顕法）は試料の微小領域の情報、例えば、結晶構造や格子配列を知るための最も有用な手段の一つである。これに電子エネルギー損失分光法（Electron Energy Loss Spectroscopy（ＥＥＬＳ））を組み合わせると、試料微小領域の元素分析や構成原子の結合状態を知ることができる[1][2][3]。「電子エネルギー損失分光法」の手法は、電子が試料を透過する際、非弾性散乱を受けた電子のエネルギー損失量を分光器を用いて調べる。エネルギー損失量は試料を構成している元素特有の値を示し、また、原子の結合状態の情報を含んでいる。これより、元素の種類や原子の結合状態の情報が得られる。

超高圧電子顕微鏡（ここでは、加速電圧が５００kV以上のものを超高圧電顕と呼び、それ以下のものを通常加速電圧電顕と呼ぶ）は通常加速電圧電顕と比べると次のような特徴を持つ。透過エネルギーが高いために厚い試料が観察できる[4]。このことは、薄い試料で生じるバルク試料と現象が異なるいわゆる「寸法効果」が避け得ることを意味している[5]。さらに、試料室が大きく、試料処理装置の組み込みの自由度が大きいことを考慮すると「その場観察」を行うのに最適であり、これまで超高圧電顕を用いて数々の成果が得られている[6]。その場観察の手法をＥＥＬＳに生かすためには、時々刻々変化するであろうＥＥＬＳ信号をできるだけ短い時間に測定できるようにする必要がある。

ＥＥＬＳの検出法には、直列検出法が従来から用いられてきた。これは分光器によって生成されたスペクトルの一部をスリットで選択し、スペクトルとスリットの相対位置を順次走査することにより検出する方法である。比較的簡単な構造で高いエネルギー分解能が得られる利点があるが、スリットを通過する電子はスペクトル全体の極く一部であるため、信号の利用効率は極めて悪い。これは測定に長時間を要することを意味し、その場観察には不向きである。

これに対し、並列検出法はスペクトル全体を一列に配列させた多数の検出素子で同時に検出する方法である。したがって、信号の利用効率が高く、原理的には直列検出法に比べて同時に検出する検出素子の数に反比例して測定時間の大幅短縮が可能で、その場観察には不可欠である。極めて電子照射損傷に弱い材料につ

いて、Rightor らは測定時間が短い並列検出法が不可欠である事例を報告している[7]。

並列検出法には、直接法と間接法がある。検出器に電子を直接照射して検出する「直接法」は、高い電子の検出感度と良いエネルギー分解能が得られる利点があったが、電子による照射損傷のため短時間で素子が劣化し、実用には至らなかった[8]。それ以後行われたほとんどの実験では、蛍光板を用いて電子強度を一旦光強度に変換して検出する「間接法」が用いられている。

並列検出器に用いられる検出素子として、テレビ用撮像管、電荷結合素子（ＣＣＤ）、フォトダイオードアレイがある。テレビ用撮像管を用いた例は Shuman と Kruit によって報告されたが、検出強度のダイナミックレンジが狭く、検出器が大きくなる欠点があった[9]。半導体検出器では、画像用のＣＣＤを用いた例（Hicks et al [10]）、とフォトダイオードアレイを用いた例（Johnson [11] [12] や Shuman [13] やEgerton [8][14]）がある。フォトダイオードアレイは、飽和信号レベルがＣＣＤのそれより１０倍程度大きくできる利点がある。チャンネル数は当初１２８又は５１２であったが、現在では１０２４チャンネルのフォトダイオードアレイが並列検出素子の主流となっている。しかし、それ自身では直列検出器に用いる光電子像倍管のように利得の可変ができない。

ＥＥＬＳ信号の検出には10^6程度の広いダイナミックレンジが必要であり、直列検出法では、測定する各エネルギー領域で、光電子増倍管の利得を変化させて対応している。並列検出器に用いるフォトダイオードアレイ自身のダイナミックレンジは通常10^4程度である。並列検出法では、通常は測定信号をメモリーの上で積算することによりダイナミックレンジの不足を補っている。 Krivanek は、検出器の前に偏向器を取り付け、電子を高速に偏向することにより、検出器に入射する電子の量を制御する「電子減衰器」を開発し、ダイナミックレンジを見かけ上拡大している[15]。

フォトダイオードアレイを構成している個々の素子間での感度は僅かに異なる。これを補正するために、測定データに感度補正を加える。例えば、Egerton はチャンネルを僅かにずらせて、測定スペクトルを積算する方法を報告している[16]。

これらの問題点が存在するが、近年、通常加速電圧（１００kV～２００kV）の電顕では実用化され、利用されつつある[15]。しかし、超高圧電顕では並列検出

法についての報告はなかった。

1－2　問題点と本論文の関係

大阪大学の超高圧電顕本体は、１９７０年に設置された HU-2000型である[17]。これを透過走査電子顕微鏡法 （Scanning Transmission Electron Microscopy（ＳＴＥＭ））のモードで動作させ、並列検出方式によるＥＥＬＳ装置が取り付けられた。ただし、対物レンズの励磁の制限より、加速電圧は５００kVである。

その際、分析される電子のエネルギーが高いことや電顕鏡体の寸法が大きいことに伴って、通常電圧の電顕ではあまり問題にされなかった点が浮かび上がってきた。すなわち、

（ａ）電顕の加速電圧が高いほど、同じ大きさのエネルギー分解能［eV］を達成するのに高い加速電圧安定度が要求され、

（ｂ）電顕寸法が大きいほど、漏洩交流磁束により電子ビーム軌道が偏向され易い。

（ａ）の問題は、加速電圧が変動すれば、分光器を通過した後の検出器上の電子エネルギー損失スペクトル（ＥＥＬＳ）は移動する。従って、加速電圧そのものの安定化が必要である。そのために、商用交流電源に電圧安定器を取り付け、加速電圧の安定化のための帰還制御回路の最適化をはかる[18]。これは第３章で扱う。

しかし、超高圧電顕の場合、技術的にも経済的にも加速電圧の安定化に限度がある。残留する加速電圧の変動を別の方法で補償することも必要である。 Kruitらは通常加速電圧の電顕において、スペクトルを検出する際にスペクトルの移動量も同時に検出し、この信号を並列検出器直前に挿入した偏向器に帰還制御して、加速電圧変動に起因する移動量を補償する方式を報告している。彼らは６０Hz以下の低周波成分のみを対象とし、６０Hzで１４dB、ドリフト成分で４０dBの改善効果を得た[19]。しかし、彼らの方法は、ゼロ損失ピーク（スペクトルにおいてエネルギー損失を受けなかった電子によるピーク）の位置変動の検出に専用の検出器を用いるため、ＥＥＬＳスペクトルのゼロ損失ピークは、その検出器に遮られ、欠落してしまう。

これに対して著者は、加速電圧発生用 Cockcroft-Walton（Ｃ-Ｗ）回路の駆動

周波数の１０次高調波までの広い周波数帯域を対象として帰還制御する。その際、ゼロ損失ピークの測定を犠牲にせず、位置変動とスペクトルの検出を一枚の蛍光板で両立させる方法[20]と、その実際の特性の解析[21]について第４章で述べる。

（ｂ）の問題は、試料上のビーム位置が変動してＳＴＥＭモードの空間分解能が低下する。また、分光器結像面でビーム位置の変動として現れ、エネルギー分解能の低下をもたらす。漏洩磁束の発生箇所は、商用電源、加速電圧発生回路駆動電源、フィラメント点火回路である。

分光器部分でビームの商用周波数成分の振れを、その周波数と同期させて打ち消す方向に偏向する「振り戻し」の方法で補償した例が、Matsuda[22]やEgerton[23]によって報告されている。

商用周波数成分のみでなく、上記の三つの周波数成分の偏向量を打ち消す「振り戻し」[18][24]について、第３章で述べる。

ビームが交流偏向されている場合、ビーム径は見かけ上大きくなる。このような場合に、ナイフエッジ法を用いて、本来のビーム径と偏向量を分離して測定する方法[25]について、第３章で述べる。

並列検出法に用いる分光器は、収差の低いことが重要であるが［1][26]、並列検出器の素子の寸法との関連で、分散が大きいことも必要である。またＥＥＬＳのエネルギー分解能[eV]を同じ値に選べば、加速電圧が高い程、高い分散を持つ分光器が必要となる。

著者が用いた並列検出器では、その構造上５μm/eV以上の分散が必要である。この値は一般に用いられる偏向角９０°,入出射端部角２６.５°の均一磁界扇型プリズムの分散と比べると５倍の高分散である。分散を大きくするために、プリズムによる分散を、回転対称レンズで拡大する方法があるが[27]、超高圧電顕に用いる場合は装置が大型になり実用的でない。

著者は、プリズムと１個の四極子の組合せによって、この高分散が得られる小型の系を開発する[28]。この電子光学系の設計に際して、エネルギー分解能の目標値を１eVとし、ＳＴＥＭモードの動作での試料上のビーム径を１０nmとする。これについて第２章で述べる。

並列検出法には、いくつかの改善策が講じられてきているが、いまだ多くの問題点がある。すなわち、

（ｃ）間接法に用いる蛍光板によるエネルギー分解能の異常低下、

（ｄ）蛍光面でのチャンネルミキシング効果、

（ｅ）検出器素子間の感度の不均一

である。

まず（ｃ）は、電子強度を一旦光強度に変換するための蛍光板において、電子照射領域より発光領域が広がるために生じ、スペクトル像の空間分解能を低下させる。従って、エネルギー分解能を異常に低下させる。著者は、蛍光板厚さに対する発光領域の大きさと発光強度の関係を調べ、蛍光板の厚さをいくら薄くしても発光領域の広がりが限界値より小さくならないことを見いだした[29]。この事実を明確に指摘した報告は著者の知る限り今までなかった。ただし、Egerton やKrivanekらの装置では、分光器の分散を極度に大きくとれるようにしている[30][31]。これはこの問題の対策と考えられなくもない。

著者も、この問題に分光器の高分散化で対処するために、前述の分光器にさらに一個の四極子を追加して可変高分散化を実現せざるを得なかった[18]。第２章にはこの設計も含める。ただし、エネルギーの測定範囲が狭くなる欠点がある。

また、蛍光板の支持基板から後方散乱された電子が、蛍光板発光のバックグラウンドになることも分かった[32]。これらに関する実験事実とそれに対する改善法のうち、蛍光板に関する事項を第５章で述べる。

次に（ｄ）では、並列検出器の検出量子効率（ＤＱＥ）が、場合によって見かけ上１を越えることが分かった。これは”チャンネルミキシング効果”[33]によるためであり、第６章で扱う。

（ｅ）について、著者はエネルギー分解能を出来るだけ損なわない信号処理法として、新しいアルゴリズムを考案する[18]。これを第６章で述べる。

１－３　本論文の構成

本論文では、上記の超高圧並列検出法の問題点（ａ），（ｂ） および、並列検出法を超高圧電顕に応用する際の問題点（ｃ），（ｄ），（ｅ）を考慮して、超高圧電顕用並列検出ＥＥＬＳの実用化のための超高圧電顕の改良および並列検出器の開発について述べる。

本章に続いて、第２章では超高圧ＥＥＬＳの電子光学系について、軌道解析を

行なう。大阪大学の超高圧電顕日立 HU-2000型は、本来、透過電子顕微鏡専用に設計されおり、これをＳＴＥＭモードおよびＥＥＬＳとして利用する場合の軌道条件を調べる。特に、ＳＴＥＭモード動作時の試料位置と試料上のビーム径、および、分光器入射面でのビーム径と開き角を算出する。次に高分散のエネルギー分析器を設計する。そしてこの系の電子光学的エネルギー分解能を算出する。

第３章では（ａ）の問題の、超高圧ＳＴＥＭモードのビームの安定化について、加速電圧そのものの安定化と、（ｂ）の問題の、漏洩磁束による偏向の補償法について述べる。

第４章では、（ａ）の問題のもう一つの対策として、加速電圧の残留変動成分をスペクトルの移動として検出し、帰還制御によって補償する方法について述べる。この特性の実測値と解析値を比較し、ショット雑音を含む系では最適帰還利得があることを示す。

第５章では、並列検出器の構造とその特性について述べる。特に蛍光板での発光領域が異常に広がる現象、ならびに、発光効率に対する蛍光体材料、蛍光板厚さ、支持構造の依存性を調べる。さらに、発光領域での広がりを抑制した蛍光板の開発について述べる。

第６章では、並列検出器での検出量子効率（ＤＱＥ）について示す。 その際、検出器の各チャンネルよりの信号が蛍光板などで予め混合されている場合の取扱いについて述べる。そして、並列検出器の構成と検出器素子間の感度補正について示す。

第７章では、この並列検出ＥＥＬＳ装置の特性を測定時間、空間分解能、エネルギー分解能の関係で示す。そして、この装置を用いて測定したＥＥＬＳスペクトルの例を示す。

第８章では、得られた結果をまとめ、今後の課題について述べる。

第２章　超高圧ＥＥＬＳの電子光学系の設計と製作　[18][28]

２－１　まえがき

本章では、まず、超高圧電顕 HU-2000 を ＳＴＥＭモードで動作させるための照射レンズ系と結像レンズ系の動作条件の解析を行う。つぎに、ＥＥＬＳ用の高分散分光器を設計する。

超高圧並列検出ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳの光学系の設計に際して、電顕加速電圧Φを５００kVで動作させたとき、ＳＴＥＭモード動作での試料上のビーム径が１０nm、また、分光器光学系のエネルギー分解能が１eVを達成することを目標とする。この値は次のような点を考慮して設定した。ビーム径はＳＴＥＭモードの空間分解能とＥＥＬＳの分析領域の大きさに関連するが、ビーム径が小さくなると試料内部でのビームの広がりの影響が大きくなる。またエネルギー分解能は、加速電圧の変動と、電子源のエネルギー分布幅によって制限される。分光器として、１個の扇型プリズムと１個の四極子レンズを組合せて５μm/eVの高分散が得られる系を設計する。この系に１個の四極子レンズを追加して可変分散系に改良する。

２－２　ＳＴＥＭモード動作のための軌道解析　[18]

大阪大学の超高圧電顕日立 HU-2000型は、本来、透過電子顕微鏡専用に設計されている[17]。従って、ＳＴＥＭモードおよびＥＥＬＳとして利用する場合の軌道条件は調べられていない。ビームの収束位置（試料位置）は照射レンズ系の励磁条件によって決まる。この計算をもとにして試料位置を設定し、試料ホルダーの形状変更を行なう。また、ＳＴＥＭモード動作時の空間分解能はビーム径に依存する。さらに、分光器入射面でのビーム径と開き角（入射条件）から、分光器のエネルギー分解能が決まる。これらより、電顕レンズ系の適切な使用条件を決める。ただし、ビーム加速電圧は５００kVとする。これは超高圧電顕HU-2000 が本来透過電顕専用に製作されており、これより高い加速電圧では、対物レンズの励磁がより強励磁を必要とするＳＴＥＭモードに対応できないためである。装置の概略図を図２-１に示す。また、光学系の配置寸法図を図２-２に示す。軌道解析の計算の詳細は付録Ａに示す。ここでは、軌道解析の結果のみを示す。

（i）　ＳＴＥＭモード動作時のビーム集束位置　z_2

図２－３は、第二集束レンズによる像面または漸近的像面 z_1 と対物レンズによる像面 z_2 の関係を示したものである。ＳＴＥＭモード動作条件での試料挿入位置はこの図より決められる。ただし、パラメータとしての対物レンズ励磁強度はその励磁電流Ｉを用いて $IN/\sqrt{\Phi^*}[A/V^{1/2}]$ で定義してある。ここで、Ｎはレンズコイルの巻数、Φ^* は相対論補正された加速電圧であり、$\Phi^* = \Phi(1 + \varepsilon\Phi)$, $\varepsilon = 0.9786 \times 10^{-6}[V^{-1}]$ で表される。

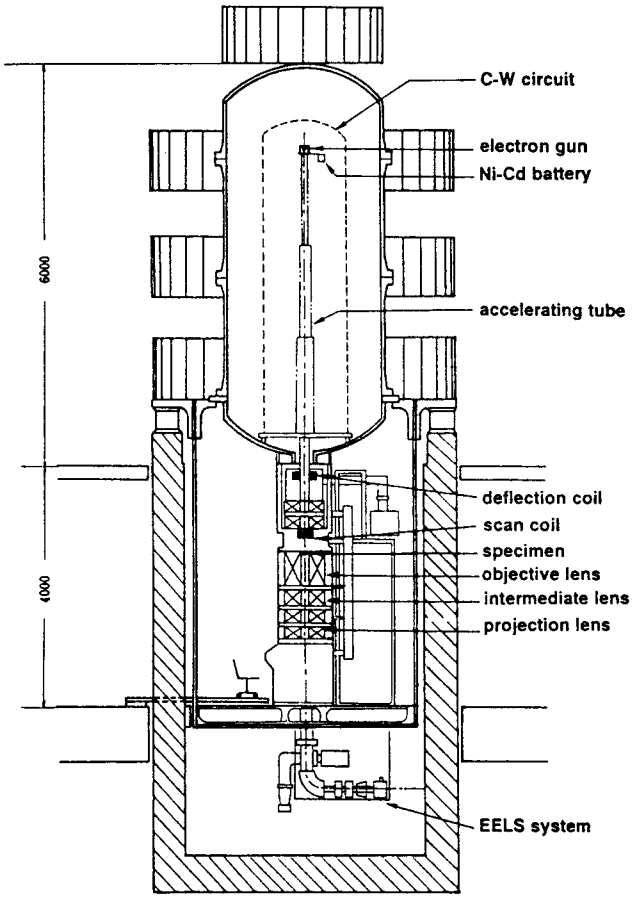


図２－１　HU-2000型超高圧電子顕微鏡の概略図

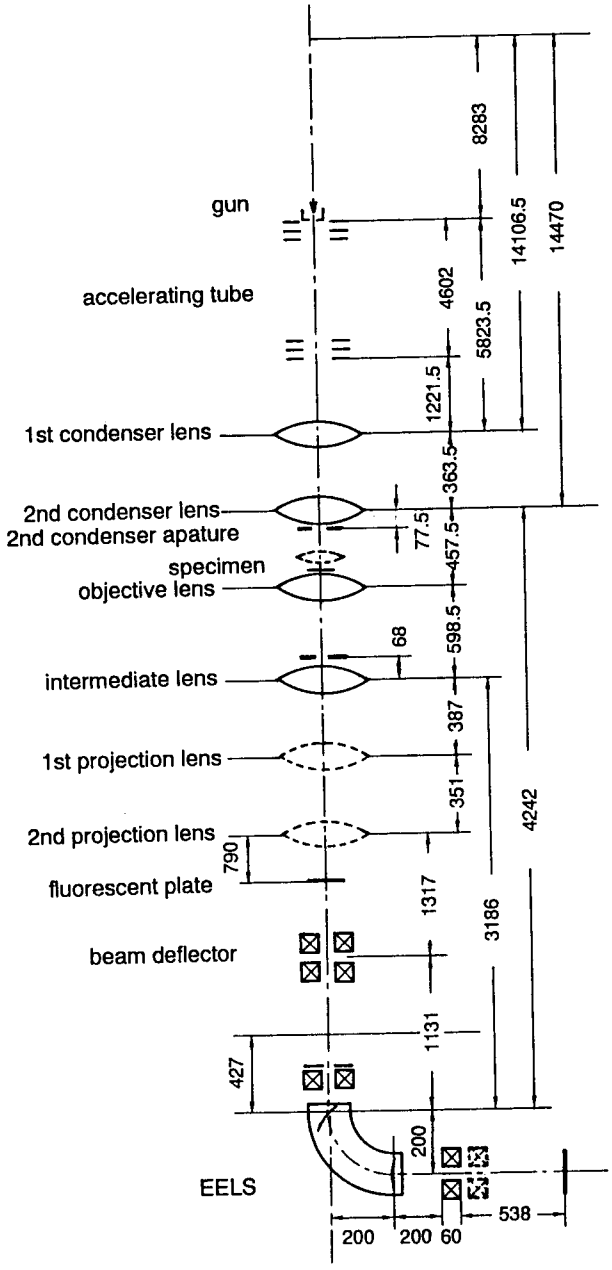


図 2 - 2　HU-2000型超高圧電子顕微鏡の電子光学寸法

（ii） ＳＴＥＭモード動作時のビーム径 $2r_2$

図２-４の$2r_2$は、第二集束レンズの励磁強度（z_1）の関数として求めた試料上でのビーム径である。ただし、対物レンズ励磁強度は$IN/\sqrt{\Phi^*}[A/V^{1/2}]$で定義してある。また、第二集束レンズ絞り径$2r_a$は１５０$\mu m\phi$である。試料上のビーム径$2r_2$は、$z_1$～－１５０㎜では対物レンズ励磁強度$IN/\sqrt{\Phi^*}$が１９～２４の範囲で１０nm以下のビーム径が達成される。

（iii）分光器入射面でのビーム径 $2r_4$ と開き半角 α_4

分光器入射面でのビーム径$2r_4$は、図２-４にも示されており、その最小ビーム径は０．４３μmである。

次節の分光器に対する軌道解析でも示されるように、エネルギー分解能は分光器の収差係数と入射条件（ビーム径$2r_4$と開き半角α_4）で決まる。図２-５（ａ）は横軸にα_4、縦軸に$2r_4$をプロットしたものである。ここでは、第二集束レンズ絞り径$2r_a$を１５０$\mu m\phi$に固定し、対物レンズ励磁強度（$IN/\sqrt{\Phi^*}$）と第二集束レンズ励磁強度（z_1）をパラメータとした。ビーム径は図２-４では複雑な曲線群で表されたが、図２-５（ａ）に示すプロットではほぼ一本の曲線の上にある。開き角α_4に逆比例する直線は光源の近軸倍率によるものである。また、α_4の３乗に比例する直線は中間レンズの球面収差によるものである。両者が等しいときにビーム径が最小となる。この近傍が望ましい動作点となる。

図２-５（ｂ）は２種類の絞り $2r_a$＝１５０$\mu m\phi$と ５０$\mu m\phi$について、図２-５（ａ）と同じプロットをしたものである。 ただし、対物レンズの励磁は$IN/\sqrt{\Phi^*}$＝２２$A/V^{1/2}$ に固定した。絞りを小さくすることにより、ビーム径の最小値は１/２から１/３になる。これは、同じ開き角α_4の条件に対して、光源の縮小率を高く出来るためである。

図２-５（ａ），２-５（ｂ）中に点線で示すエネルギー分解能の曲線については ２－４節で述べる。

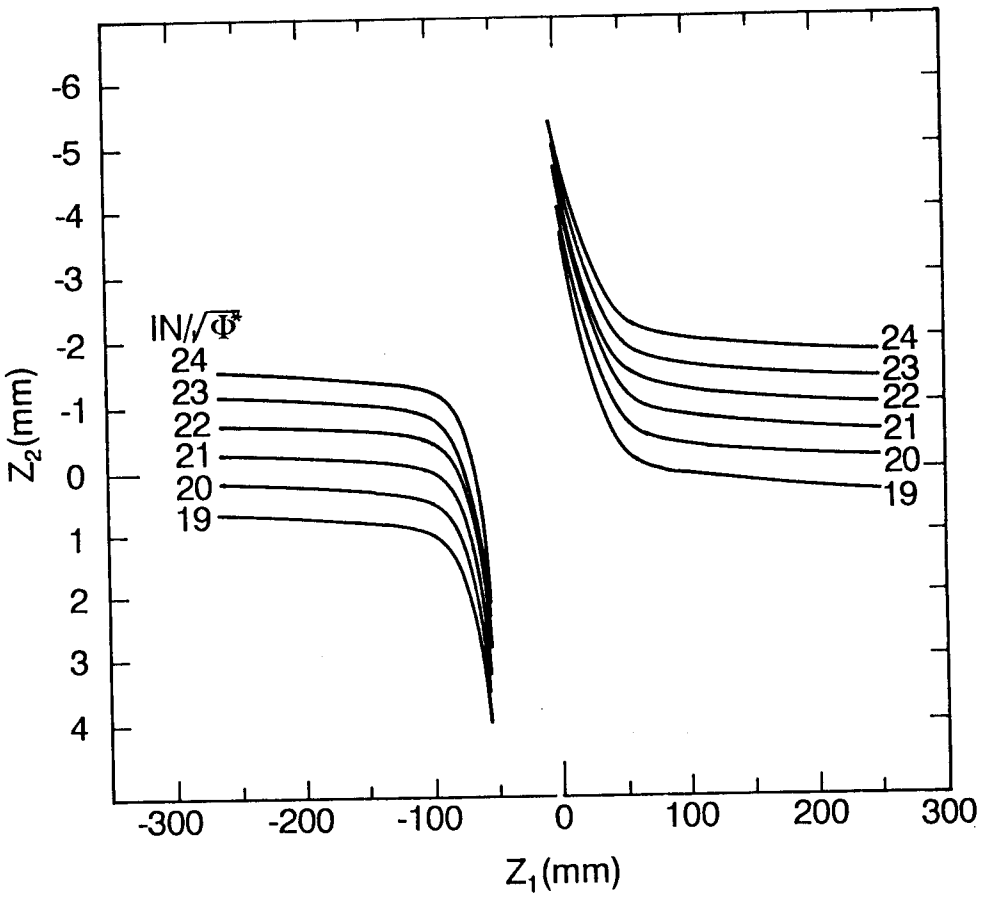


図２－３　第二集束レンズによるビームの結像面または漸近的結像面 z_1 と対物レンズによるビーム結像面 z_2 の関係
（対物レンズの励磁強度を $IN/\sqrt{\Phi^*}$ ＝１９～２４A/$V^{1/2}$ で示す。）

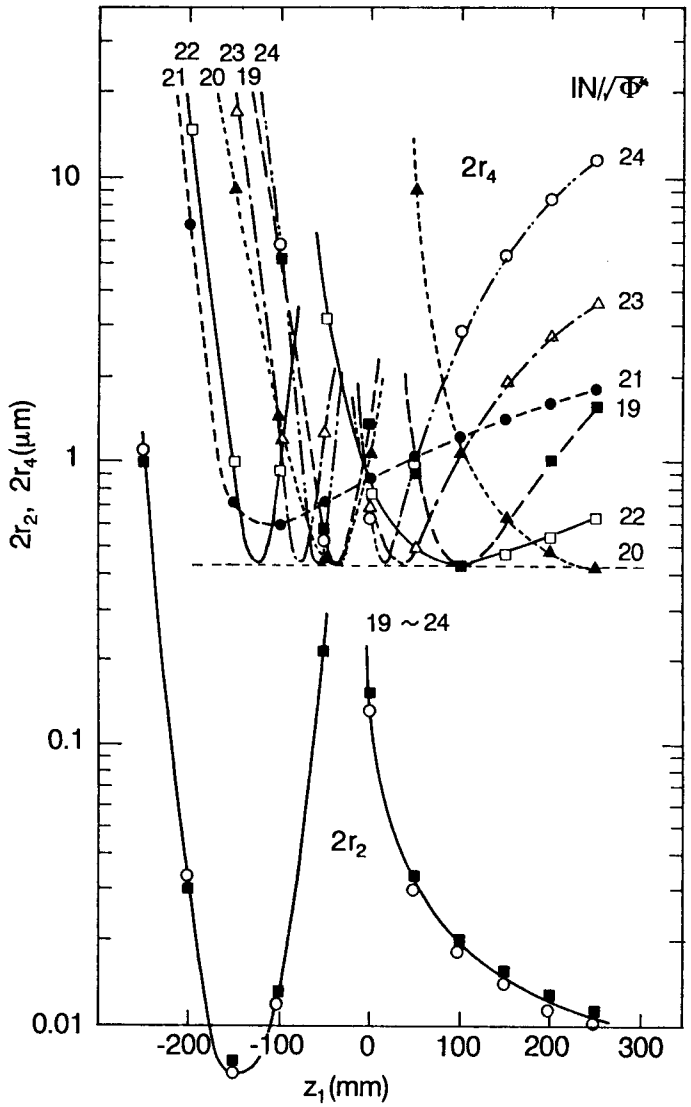
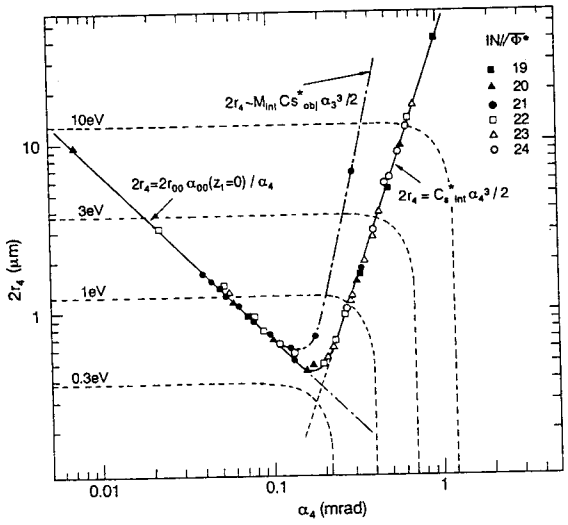


図２－４　第二集束レンズによるビーム結像面または漸近的結像面ｚ１に対する試料上のビーム径２ｒ２および分光器物面のビーム径２ｒ４
（第二集束レンズ絞り径は２ｒａ＝１５０μｍφであり、対物レンズの励磁強度はＩＮ/$\sqrt{\Phi^*}$＝１９～２４Ａ/Ｖ$^{1/2}$で示す。）

（a）



（b）

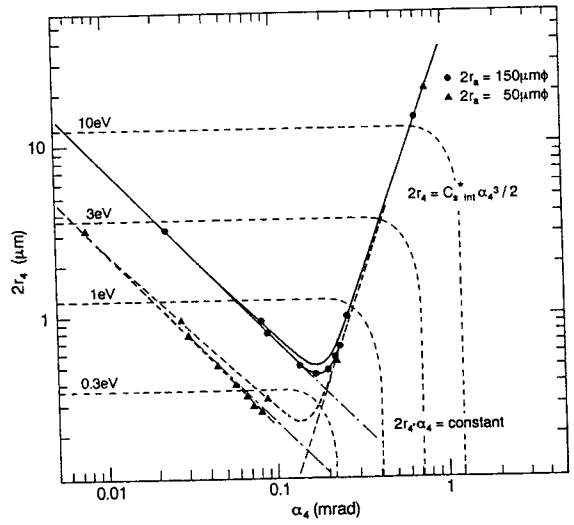


図２－５　　分光器入射面での開き角α_4とビーム径$2r_4$の関係

（ａ）（第二集束レンズ絞り径は$2r_a$＝１５０$\mu m\phi$であり、対物レンズの励磁強度は$IN/\sqrt{\Phi^*}$＝１９～２４$A/V^{1/2}$で示す。）

（ｂ）（第二集束レンズ絞り径は$2r_a$＝１５０，５０$\mu m\phi$であり、対物レンズの励磁強度は$IN/\sqrt{\Phi^*}$＝２２$A/V^{1/2}$で示す。）

２－３　分光器の軌道解析　[18][28]

２－３－１　高分散分光器の設計

この章では、長さ［m］，曲率［m^{-1}］，四極子レンズ強度 K_Q^*［m^{-1}］、および、運動量分散 D［s/kg］は、プリズム軌道半径 R［m］、および、ビームの運動量［kg•m/s］で規格化して表す。規格化された値（無単位）に対しては、斜体文字で示す。

ｉ）分散

分光器に要求される分散の大きさはＥＥＬＳのエネルギー測定範囲と並列検出器の寸法で決まる。今、エネルギー測定範囲を１keV、検出器（フォトダイオードアレイ）の寸法を２５mmとすると、必要な分散は　２５mm/１０００eV＝２５μm/eVとなる。並列検出器の前に倍率５倍の拡大光学レンズを取り付けるとしても、５μm/eV程度の高分散が必要である。この値は、プリズムの軌道半径Ｒが２００mmとした場合、規格化した運動量分散 D で表すと約１９、エネルギー分散 D_E［脚注］で表すと約１２．５となる。一般に用いられる偏向角９０°、入出射端部角　２６．５°の均一磁界扇型プリズムの分散と比べるとその５倍である。

図２-６に一般的な分光器の光学寸法パラメータを示す。質量分析器の場合には、プリズム磁極の入射端面から入射面までの距離 L_1 は $L_1 > 0$ で用いられる。ＥＥＬＳの分光器の場合は、$L_1 \geq 0$、$L_1 < 0$ のどちらの条件も、電顕の中間レンズの励磁条件によって容易に実現できる。$L_1 < 0$ は分光器の入射面（仮想物面）がプリズムの磁場中あるいはその後にあることを意味する。

分散の方向とその直角方向のいずれもが収束する二方向収束条件のもとで高い分散を実現するには、$L_1 < 0$ の場合が適している。しかしその場合には、大き

［脚注］規格化したエネルギー分散 D_E はエネルギー変化率（ΔＥ/Ｅ）に対する電子軌道変化率（ΔＲ/Ｒ）の比で定義する。５００kVの電子に対して相対論補正して求めると、この値は以下の計算で用いる運動量分散 D の値の０．６６７倍となる。

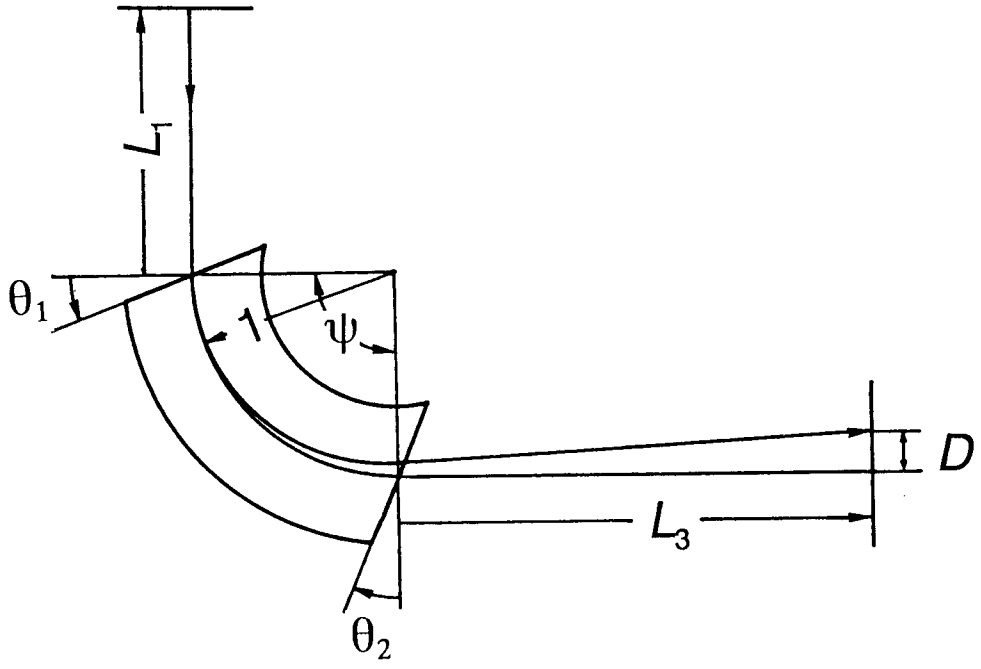


図２-６　分光器の基本的光学寸法パラメータ

な出射端部角θ_2を必要とする。この端部角の効果は四極子によって置き換えることができる。ここでは、「出射端部角の効果を四極子を用いて置換する」という考え方のもとで設計する。

分散と近軸量の関係は、ＳＣＯＦＦ（Sharp Cut Off Fringing Field）の近似式を用いて導出する[34][35]。プリズムの分散とその出射端部角θ_2の関係を調べる。ＳＣＯＦＦ近似では、均一磁場を持つ扇形プリズムの運動量分散Dは次式で与えられる[35]。

$$D = 1 + L_3 (1 + \tan \theta_2) \qquad (2-1)$$

ここで、 L_3はプリズムの出射端からスペクトル測定面までの距離であり、偏向角を$\phi = 90°$とする。式（2-1）はθ_2を正の方向へ増加していくとDも増加することを意味している。分散方向およびその直角方向がスペクトル測定面で共に収束する二方向収束の条件を実現させる。これは入射端部角 θ_1を選ぶことにより可能となる。図2-7に、L_3が2，5，7 の場合について、D、L_1、および、入射端部角θ_1 の各値を出射端部角θ_2 の関数として示す。この図から、Dは$L_1 < 0$の場合に大きくなる。D～20の高分散値が得られるのは、 $L_3 = 5$、$\theta_2 = 70°$ 、$L_1 = -3.93$、$\theta_1 = 30.7°$ のときである。 これらの値を表2-1の1の欄に示し、その形状を図2-8の1に示す。

しかしながら、出射端部角 $\theta_2 = 70°$ という大きさは計算上実現できても、実際の装置ではビーム軸に対して調整が微妙となることが予想される。そこで、出射端部角の効果を四極子を用いて置換する。この場合のプリズムと四極子の配置、および、その光学寸法パラメータを 図2-8の2に示す。 表2-1の2および 図2-8の2は四極子をプリズムと四極子の距離 $L_2 = 1$だけ離した場合について、磁場の端縁場効果も含めて求めた結果について示してある。この場合は、実装可能な形状および配置であり、運動量分散 $D = 20.6$が得られている。この形状のプリズムに、その端面に曲率を与えて収差を小さくする。これについては次節で取り扱う。

表2-1　プリズムおよび四極子の光学寸法パラメータの大きさ

	L_1	θ_1°	ρ_1	θ_2°	ρ_2	L_2	L_Q	K_Q	L_3	D
1	-3.93	30.7	0	70	0	0	0	0	5	19.7
2	2.136	45	0	0	0	1	0.3	-2.798	2.615	20.6
3	2.136	45	0.58	0	-0.84	1	0.3	-2.790	2.693	21.0

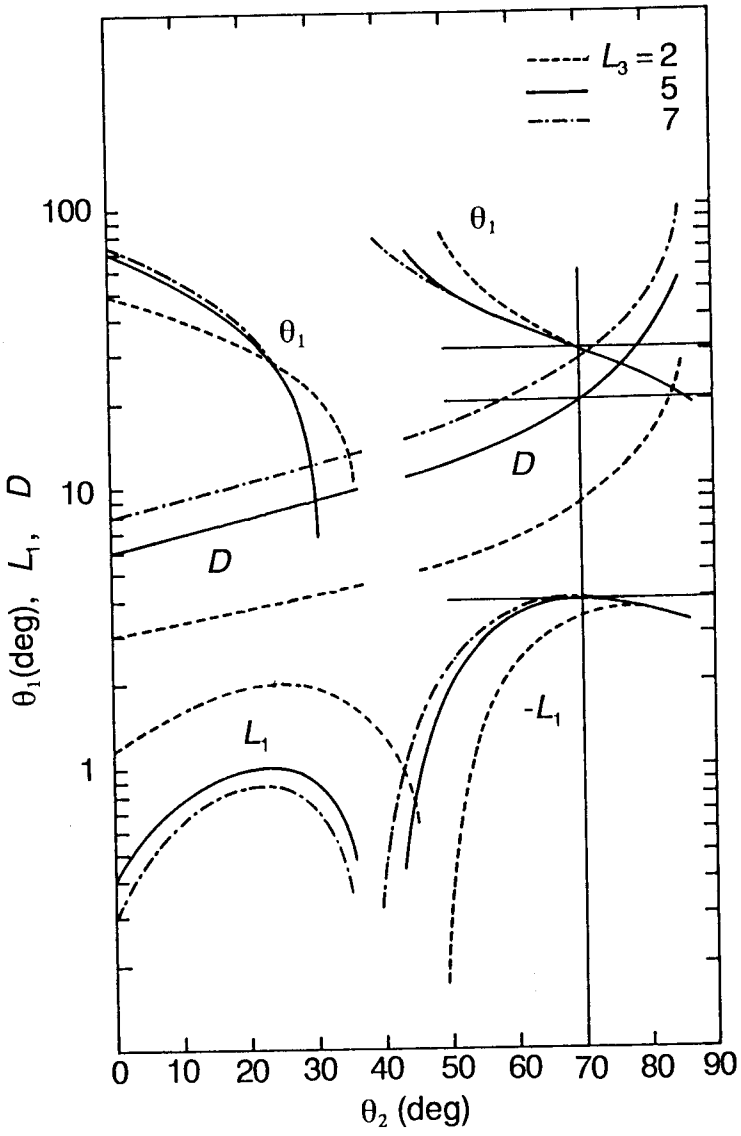


図２－７ プリズムの二方向収束条件下で、出射端部角θ_2に対する運動量分散D、プリズム磁極入射端面から入射面までの距離L_1、 および入射端部角θ_1の関係。（プリズム出射端からスペクトル測定面までの距離 $L_3 = 2$，５，７、偏向角$\phi = 90°$の場合）

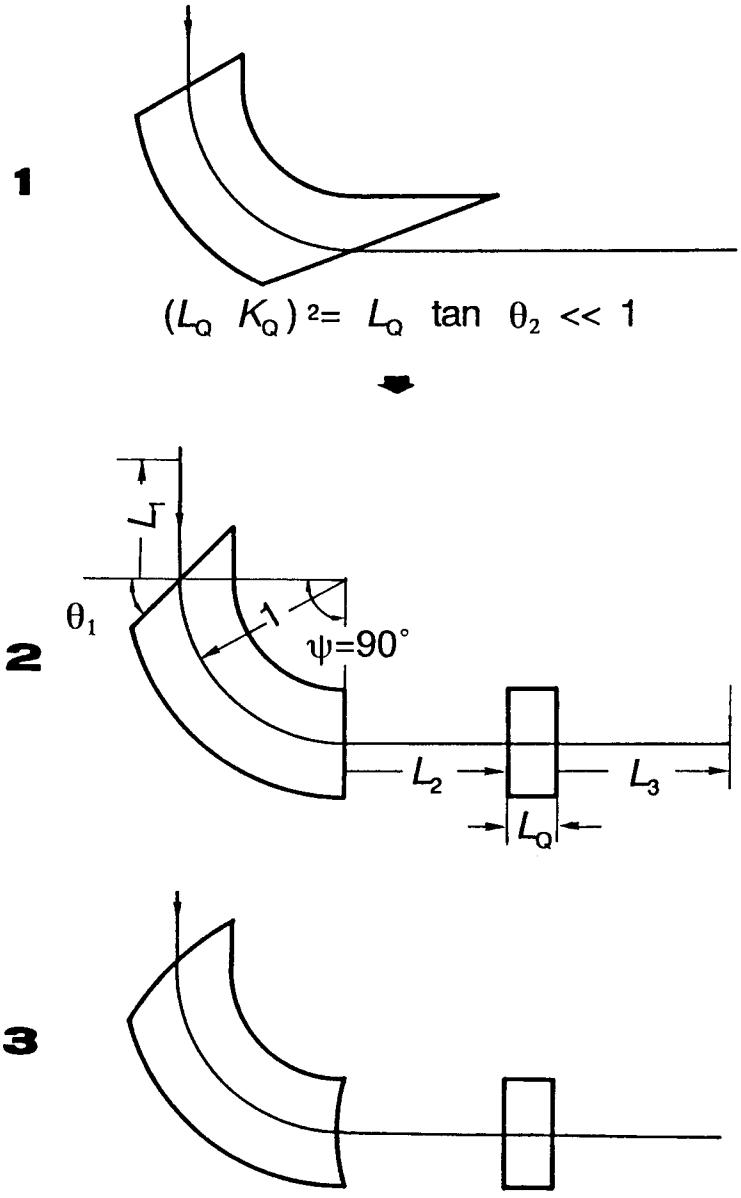


図２－８　表２－１の光学寸法パラメータを持つプリズムおよび四極子の形状

ii) 収差項

分光器のスペクトル測定面での分散方向の軌道をｕ、また、その直角方向の軌道をｖで表す。ｕについて３次の収差まで、ｖについて２次の収差まで考慮すると次式となる[36]。

$$
\begin{aligned}
u = {} & A_u u_0 + A_\alpha \alpha_0 + D\delta \\
& + A_{uu} u_0^2 + A_{u\alpha} u_0 \alpha_0 + A_{u\delta} u_0 \delta + A_{\alpha\alpha} \alpha_0^2 \\
& + A_{\alpha\delta} \alpha_0 \delta + A_{\delta\delta} \delta^2 \\
& + A_{vv} v_0^2 + A_{v\beta} v_0 \beta_0 + A_{\beta\beta} \beta_0^2 \\
& + A_{uuu} u_0^3 + A_{uu\alpha} u_0^2 \alpha_0 + A_{uu\delta} u_0^2 \delta + A_{u\alpha\alpha} u_0 \alpha_0^2 \\
& + A_{u\alpha\delta} u_0 \alpha_0 \delta \\
& + A_{u\delta\delta} u_0 \delta^2 + A_{uvv} u_0 v_0^2 + A_{uv\beta} u_0 v_0 \beta_0 \\
& + A_{u\beta\beta} u_0 \beta_0^2 + A_{\alpha\alpha\alpha} \alpha_0^3 \\
& + A_{\alpha\alpha\delta} \alpha_0^2 \delta + A_{\alpha\delta\delta} \alpha_0 \delta^2 + A_{\alpha vv} \alpha_0 v_0^2 + A_{\alpha v\beta} \alpha_0 v_0 \beta_0 \\
& + A_{\alpha\beta\beta} \alpha_0 \beta_0^2 \\
& + A_{\delta\delta\delta} \delta^3 + A_{\delta vv} \delta v_0^2 + A_{\delta v\beta} \delta v_0 \beta_0 + A_{\delta\beta\beta} \delta \beta_0^2 \\
& + \cdots
\end{aligned}
\qquad (2-2)
$$

$$
\begin{aligned}
v = {} & A_v v_0 + A_\beta \beta_0 \\
& + A_{vu} v_0 u_0 + A_{v\alpha} v_0 \alpha_0 + A_{v\delta} v_0 \delta + A_{\beta u} \beta_0 u_0 \\
& + A_{\beta\alpha} \beta_0 \alpha_0 + A_{\beta\delta} \beta_0 \delta + \cdots
\end{aligned}
\qquad (2-3)
$$

ここで、u_0，v_0，α_0，β_0，δは分光器入射面での電子軌道の初期値である。u_0とv_0は分散方向とその直角方向の位置、α_0とβ_0は中心軌道に対する分散方向およびその直角方向の軌道角、また、δは電子運動量の基準値よりの相対偏移を表す。式（2-2）の最初の3項および式（2-3）の2項が近軸項であり、式（2-2）の第3項は分散である。

$A_u u_0$，$A_v v_0$は分散方向およびその直角方向の倍率である。二方向収束条件では　$A_\alpha \alpha_0 = A_\beta \beta_0 = 0$となる。また、式（2-2）の第3項$D\delta$は、入射電子の運動量が$\delta$だけ偏移したときのスペクトル測定面での軌道偏移を表す。分散方向の二次の収差項は9項あり、直角方向には6項ある。2次の収差係数を2文字の添え字（A_{uu}など）で表す。分散方向の3次収差項は19項あり、その収差係数を3文字の添え字（A_{uuu}など）で表す。

2次と3次の収差係数の計算には、計算プログラム　"TRIO"（Third Order Ion Optics）を用いた。このプログラムは松田と松尾により質量分析器用に開発されたものである[37]。これは自由空間、静電および磁界プリズム、静電および磁界四極子、などの一般的な電子光学系に適用でき、端縁場効果も含めた3次項までの計算が可能である。

計算に際して、プリズムのギャップ間距離はプリズム内の軌道の最大偏移量の約2倍　0.06（12mm）に設定した。

（iii）収差補正

プリズムの2次の収差は入射端面と出射端面に 図2-9に示すように曲率を持たせることにより小さくできる[38]。 入射および出射端面の曲率を規格化し、$\rho_1 = ((1/R_{in})/(1/R))$および$\rho_2 = ((1/R_{out})/(1/R))$で表す。

ここでは、次の三つの2次収差項 （$A_{\alpha\alpha}\alpha_0^2$，$A_{\beta\beta}\beta_0^2$，$A_{\alpha\delta}\alpha_0\delta$）が小さくなるように$\rho_1$と$\rho_2$の大きさを決める。これはこれらの収差が主としてエネルギー分解能に影響するためである。その手順として、始めに、ρ_1とρ_2の関係を決める。これには、二つの収差係数$A_{\alpha\alpha}$と$A_{\beta\beta}$が等しくなる条件を用いる。図2-10（a）にρ_2とρ_1の関係を示す。このρ_1とρ_2に対する $A_{\alpha\alpha} = A_{\beta\beta}$と$A_{\alpha\delta}$の値も同じ図に示す。 ρ_2の増減に対して、$A_{\alpha\alpha}$と$A_{\alpha\delta}$はその増減の方向は逆になっている。次に、ρ_1とρ_2の大きさを決める。これには、

2次収差項 $A_{\alpha\alpha}\alpha_0^2R$（または、$A_{\beta\beta}\beta_0^2R$）と$A_{\alpha\delta}\alpha_0\delta R$が等しくなる条件を用いる。図2-10（b）に入射角α_0と運動量偏移δを与えたときの二つの収差項を図示した。ただし、STEMモードでの分光器入射条件（図2-5（a））を参考にして、α_0（$=\alpha_4$）$<3.3\times10^{-4}$ とし、また、EELSの検出範囲が1000eVであることより$\delta=1.33\times10^{-3}$とした。最も収差項が大きくなる$\alpha_0=3.3\times10^{-4}$ に対して、二つの収差項が等しくなる条件から、$\rho_2=-0.84$と $\rho_1=0.58$の値が決められた。このときのプリズム形状を表2-1の3および図2-8の3に示す。

このプリズム形状に対して、"TRIO"で計算した分散方向の収差係数および収差項を表2-2に示す。これより、スペクトル測定面の軌道uに寄与する項は、$A_u u_0$（近軸項）、$A_{\alpha\alpha}\alpha_0^2$、$A_{\beta\beta}\beta_0^2$、$A_{\alpha\delta}\alpha_0\delta$、および、$A_{\delta\delta}\delta^2$である。ただし、収差項$A_{\delta\delta}\delta^2$は分光器分散特性の2次の項である。この非線形項は分散5.63（一次項）の0.25%以下である。エネルギー分解能に対する収差項 $A_{\delta\delta}\delta^2$の寄与を計算する場合には、δは測定エネルギー幅 1000eVではなく、加速エネルギーの分布幅（～3eV）を用いる必要がある。この値に対して、$A_{\delta\delta}\delta^2$はおよそ5桁小さくなり、他の収差項と共に無視される。

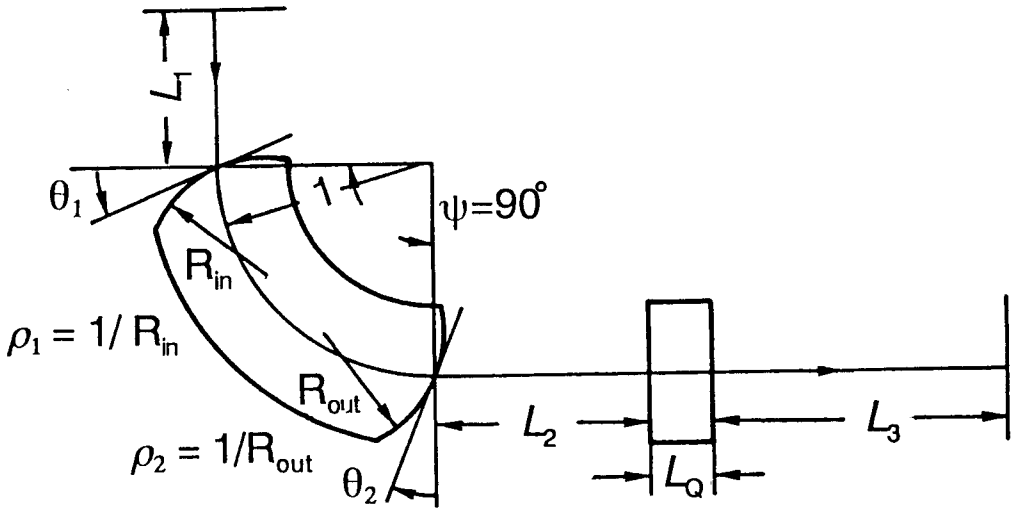


図2-9　プリズムと四極子の配置と光学寸法パラメータ

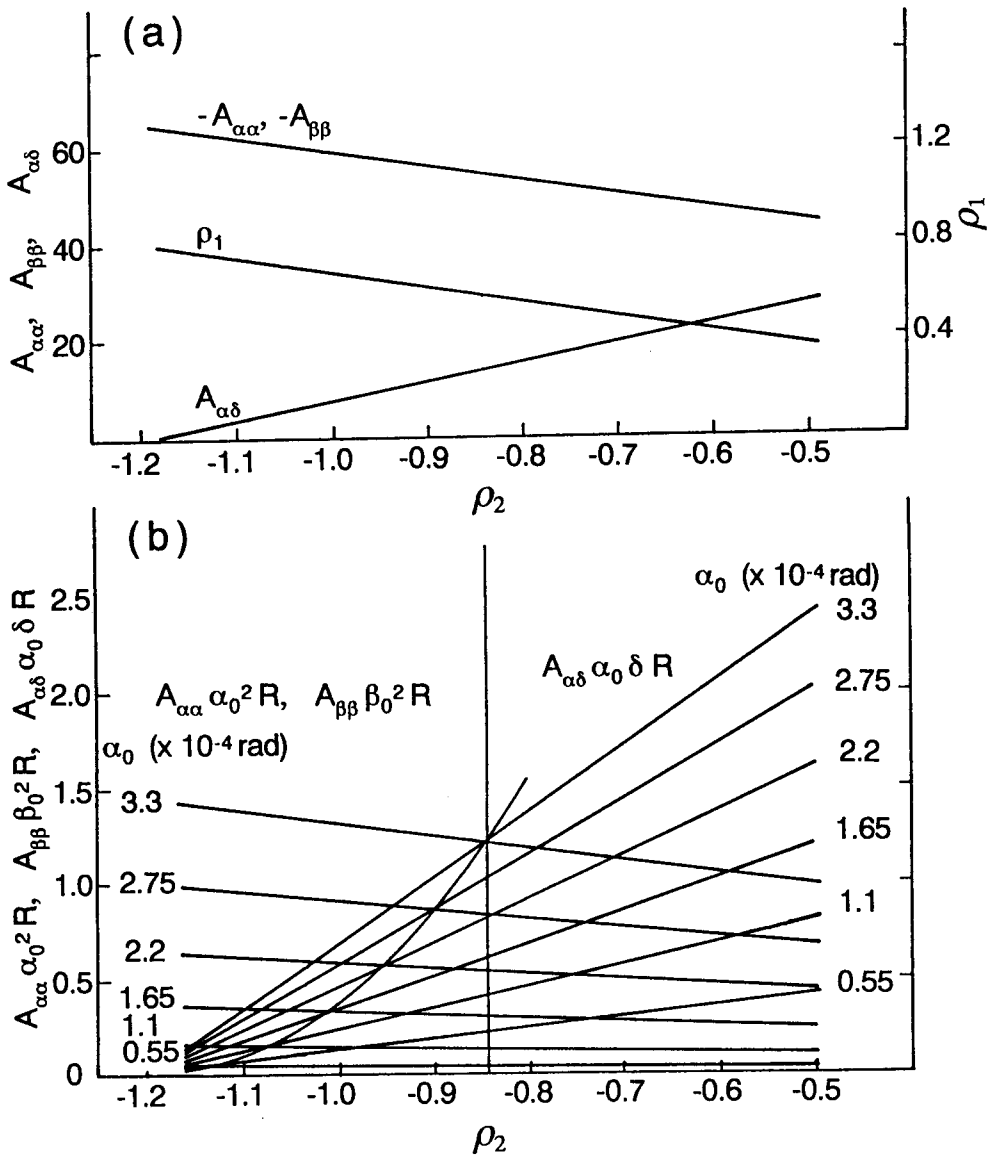


図２－１０（ａ）プリズム出射端面の曲率ρ_2と入射端面の曲率ρ_1の関係、
および、このときの二次収差係数　$A_{\alpha\delta}$と$A_{\alpha\alpha}=A_{\beta\beta}$

（ｂ）　プリズム出射端面の曲率ρ_2に対する収差

$A_{\alpha\delta}\alpha_0\delta R$　と　$A_{\alpha\alpha}\alpha_0^2 R = A_{\beta\beta}\beta_0^2 R$

表2-2　分光器のスペクトル測定面における各収差項の大きさ

	収差係数	収　差　項　(mm) 入射条件 $u_0R=v_0R=3\times10^{-4}$mm $\alpha_0=\beta_0=3.3\times10^{-4}$rad $\delta=1.33\times10^{-3}$
A_u	−4.00	-1.20×10^{-3}
A_α	0	0
D	21.1	5.63
A_{uu}	−2.53	-1.14×10^{-8}
$A_{u\alpha}$	−25.3	-2.50×10^{-6}
$A_{u\delta}$	11.5	4.60×10^{-6}
$A_{\alpha\alpha}$	−54.1	-1.18×10^{-3}
$A_{\alpha\delta}$	14.1	1.24×10^{-3}
$A_{\delta\delta}$	−40.1	-1.40×10^{-2}
A_{vv}	−15.0	-6.75×10^{-9}
$A_{v\beta}$	−53.7	-5.30×10^{-6}
$A_{\beta\beta}$	−54.5	-1.19×10^{-3}
A_{uuu}	−5.40	-3.65×10^{-15}
$A_{uu\alpha}$	−31.5	-4.68×10^{-12}
$A_{uu\delta}$	49.7	2.98×10^{-11}
$A_{u\alpha\alpha}$	−106	-3.46×10^{-9}
$A_{u\alpha\delta}$	85.3	1.13×10^{-8}
$A_{u\delta\delta}$	−215	-1.10×10^{-7}
A_{uvv}	−41.8	-2.82×10^{-14}
$A_{uv\beta}$	−163	-2.42×10^{-11}
$A_{u\beta\beta}$	−189	-6.17×10^{-9}
$A_{\alpha\alpha\alpha}$	−139	-9.99×10^{-7}
$A_{\alpha\alpha\delta}$	−2.15	-6.24×10^{-8}
$A_{\alpha\delta\delta}$	−309	-3.62×10^{-5}
$A_{\alpha vv}$	−203	-3.01×10^{-11}
$A_{\alpha v\beta}$	−585	-1.91×10^{-8}
$A_{\alpha\beta\beta}$	−578	-4.00×10^{-6}
$A_{\delta\delta\delta}$	219	1.03×10^{-4}
$A_{\delta vv}$	−82.8	-4.96×10^{-11}
$A_{\delta v\beta}$	43.8	5.78×10^{-9}
$A_{\delta\beta\beta}$	150	4.40×10^{-6}

2－3－2　可変高分散分光器への改造設計

2－3－1で述べたように1個のプリズムと1個の四極子の組合せで5．6 μm/eVの高分散が得られる系を開発した。しかし、第5章の5－3で述べるように、並列検出器の蛍光板で入射ビーム幅より発光領域がかなり広がることが実験的に見いだされ、分散を上げる必要が生じた。そこで、この系にさらに1個の四極子を加え、高分散側に分散値を可変にした。この配置と距離を図2-11に示す。プリズムと四極子の距離L_2は1、四極子の長さL_Qと四極子間の距離L_4は共に0．3に設定した。2個の四極子レンズ強度［脚注］をK_{Q1}、K_{Q2}で表す[37]。二方向収束条件のもとではK_{Q1}とK_{Q2}は独立には選べない。図2-12に二方向収束条件を満足するK_{Q1}に対するK_{Q2}の値を鎖線で示し、その組合せにおける分散を実線で示す。また、そのときのプリズムの磁極入射端面から入射面までの距離L_1を点線で示す。プリズム1個と2個の四極子の組合せで、5．6 μm/eVから50 μm/eVまで可変できる可変分散型の光学系に改造した。

2－4　分光器のエネルギー分解能　[18][28]

ＳＴＥＭモード動作の電顕と上記の分光器を組み合わせたとき、この電子光学系のエネルギー分解能を計算する。

分光器のスペクトル測定面における分散方向のビーム軌道は 式（2-2）のuである。ビームの入射条件（中心軌道からの分散およびその直角方向の距離 u_0R，v_0R、中心軌道からの分散およびその直角方向の角度α_0，β_0、運動量の相対偏移 δ）に対する1次、2次、3次の項の大きさを表2-2に示した。ある一定の損失エネルギーに対して分解能を導出する場合、$\delta=0$と置ける。このとき、

［脚注］

$$\pm K_Q^* = \sqrt{(\pm B_Q / R_Q)(e / \sqrt{2mE})} \quad [m^{-1}]$$

ここで　B_Q:磁極の磁場、　R_Q:磁極の半径、　e:電子の電荷、

m:電子の質量、　E:電子のエネルギー

これをプリズム半径で規格化すると次式になる。

$$\pm K_Q = \pm K_Q^* / (1/R)$$

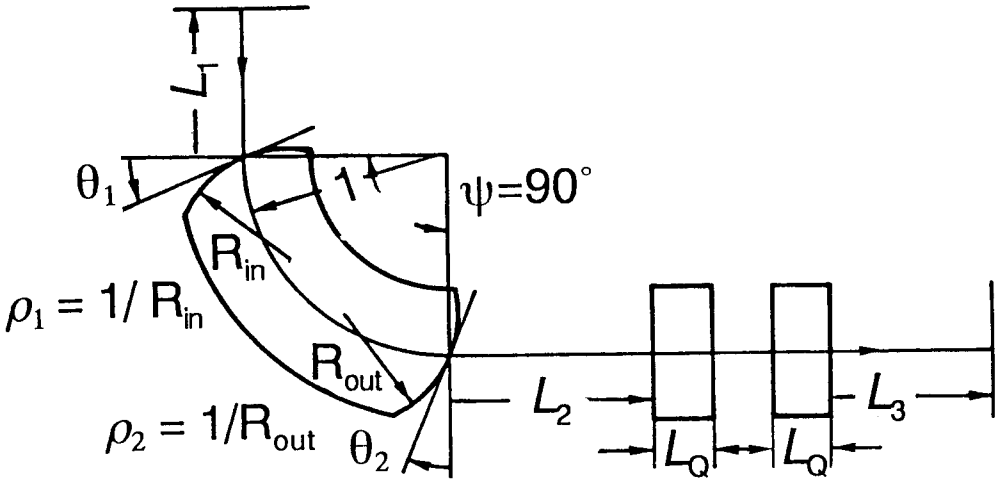


図２-１１　可変分散系のプリズムと四極子の光学寸法パラメータ

ビームの軌道ｕに寄与する項として近軸項 $A_u u_0 R$ と２次の収差項 $A_{\alpha\alpha} \alpha_0^2$ と $A_{\beta\beta} \beta_0^2$ が残る。

２－３節で示した分光器入射ビームの初期条件（$u_0 R$，$v_0 R$，α_0，β_0）と２－２節でのＳＴＥＭ光学系の出射ビーム条件（r_4，α_4）は次の関係にある。

$$r_4^2 = (u_0^2 + v_0^2) R^2 \qquad \alpha_4^2 = \alpha_0^2 + \beta_0^2 \qquad (2-4)$$

これより、収差項は $A_{\alpha\alpha} \alpha_4^2$ で表せる。さらに、近軸ビーム径と収差項によるビームの広がりの和２r_5を近似的に次のように書く。

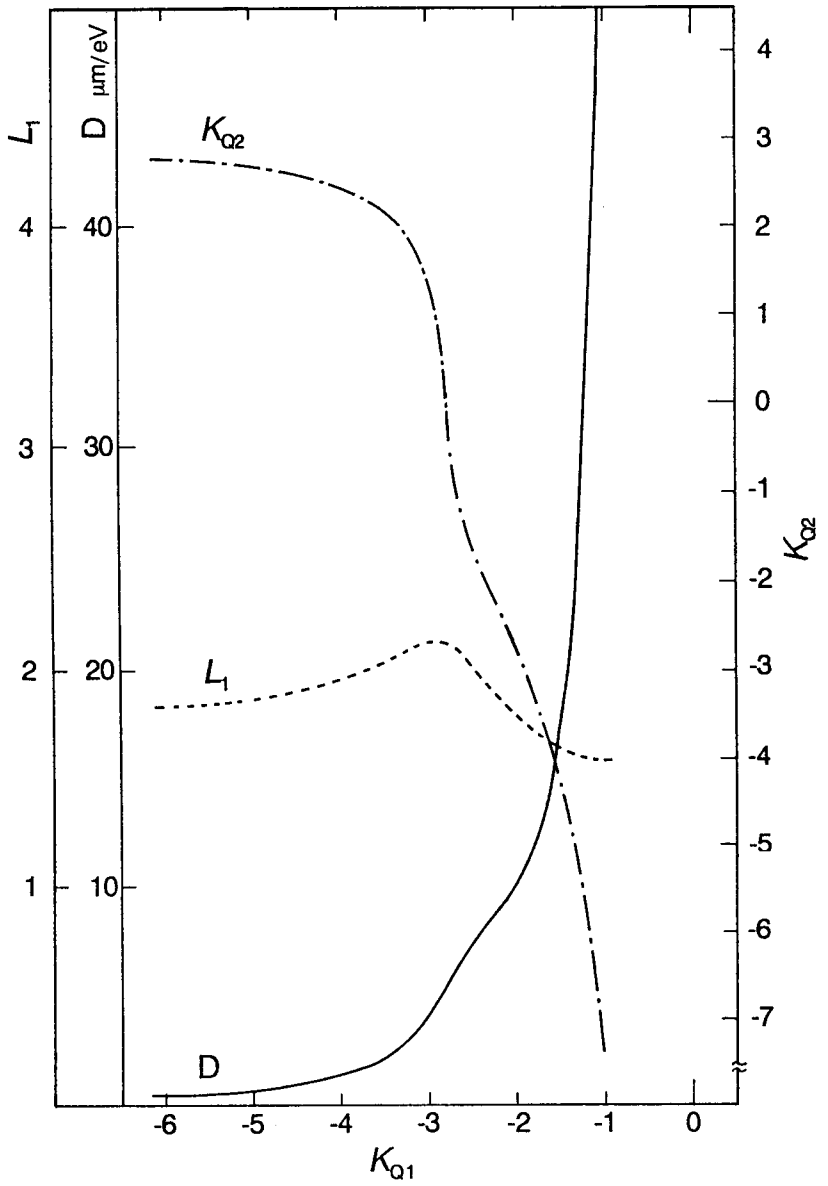


図２－１２ 分光器（図２－１１）の可変分散特性。　二方向収束条件を満足するK_{Q1}に対するK_{Q2}の値を鎖線で示し、その組合せの分散Dを実線で示す。そのときのプリズムの磁極から入射面までの距離L_1を点線で示す。

$$r_5^2 = (A_u r_4)^2 + (A_{\alpha\alpha}\alpha_4^2)^2 \qquad (2-5)$$

規格化した運動量分散Dとエネルギー分散D_Eの関係

$$D_E = (\Delta R / R) / (\Delta E / E) = 0.667 D$$

を用い、ΔRがr_5に等しいときのΔEの値をΔE_Bとおくと次式が導かれる。

$$\Delta E_B^2 = 2.6 r_4^2 + 39 \alpha_4^4 \qquad (2-6)$$

ここで右辺第1項、第2項の係数は、ΔE_BをeV、r_4をμm、α_4をmradで表わしたときの値である。この式で求めた等エネルギー分解能を持つ曲線を、図2-5（a），2-5（b）に点線で書き入れた。

これらの図より、最も分解能がよくなる分光器入射ビーム条件は、第二集束レンズ絞り径$2r_a = 150\mu m\phi$のとき $2r_4 = 0.44\mu$m，$\alpha_4 = 0.16$mradとなり、分光器分解能は約0.4eVとなる。また、$2r_a = 50\mu m\phi$では$2r_4 = 0.23\mu$m，$\alpha_4 = 0.13$mradのとき約0.2eVとなる。

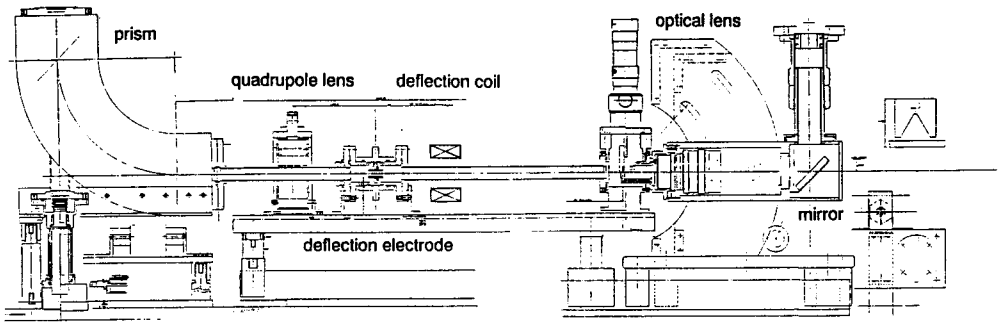


図2-13　プリズムと四極子および検出器系の実装図面

２－５　分光器の製作

プリズムの軌道半径Ｒは２００㎜とし、上記の設計に従って数値制御による機械加工で製作した。 図２-１３はこのプリズムと四極子の実装図面である。四極子、偏向器、および、蛍光板は摺動レールの上に設置されていて、その距離の調整が可能である。またプリズムおよび摺動レールは調整ねじで軸合わせができる構造になっている。

２－６　むすび

透過形電顕として設計された HU-2000型電顕をＳＴＥＭモードとして利用した場合の試料上のビーム径、および、これにＥＥＬＳ用の分光器を取り付けた場合のエネルギー分解能を電子光学的面より計算し、分光器を設計、製作した。ただし、対物レンズの励磁の制限より、ビーム加速電圧は５００kVである。この結果、次のような点が明らかになった。

①試料上のビーム径が１０nm以下となり、分解能１eV以下となる対物および第二集束レンズ励磁条件は存在する。

②軌道半径２００㎜のプリズムと一つの四極子よりなる分光器を用いれば、５．６μm/eVの高分散が得られる。

③この系の四極子を２個にすることにより、二方向収束条件下で、 ５．６μm/eVから５０μm/eVの可変分散系が得られる。

④ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳに対する電子光学系のエネルギー分解能は第二集束レンズ絞り径が１５０μmφのとき約０．４eV、５０μmのとき約０．２eVとなる。

第３章　超高圧ＳＴＥＭのプローブビーム安定化　[18][24][25]

３－１　まえがき

本章では、まず、プローブビームエネルギーの安定度に直接関係する加速電圧電源の安定化について述べる。

次に、加速管を通過中の電子ビームが受ける漏洩交流磁束による偏向を補償する方法について述べる。

最後に、ビームが高周波で偏向されている場合について、この偏向の大きさと真のビーム径を分離して測定する方法を示す。

３－２　加速電圧の安定化 [18]

３－２－１　自動電圧安定器による電源の安定化

図３-１に加速電圧の高圧発生回路のブロック図を示す。発振器からの高周波信号（５kHz）は、負帰還制御用の変調器と 加速電圧制御用の減衰器を通してCockcroft-Walton回路（Ｃ-W回路）駆動用の電力増幅器に送られる。これらの増幅器のうち信号電力レベルの小さい段までは、その陽極直流電源を安定化している。しかし、電力増幅部の最終段の三極管の陽極直流電源は１０kV-１Aの高圧高電力であり、十分な安定化がなされていない。そのため商用電源の変動の影響を受け易い構造であり、これまで、商用電源の電圧変動が加速電圧の安定度を損なう原因となっていた。

これを改善するため、商用電源ラインに 表３-１に示す仕様の自動電圧安定器を挿入した。一般に、自動電圧安定器にはサイリスタにより制御するもの、一旦直流に変換して制御するもの、鉄共振型のものがある。ここではある程度大容量で、応答特性の比較的良好なサイリスタ方式を採用した。導入した安定器は池上通信機製のAS3-20KW型である。この自動電圧安定器の挿入による安定度改善の測定は６桁表示のディジタル電圧計で計測した。商用電源電圧、Ｃ-W回路電源電圧、加速電圧に対する１分間当たりの変動を表３-２にまとめて示す。自動電圧安定器により商用電源電圧は1.2×10^{-3}から2.4×10^{-4}に安定化され、その結果、加速電圧の安定度は、帰還制御しない場合で１２dB、帰還制御した場合で約６dB改善することができた。後者の改善度が小さいのは、帰還制御による安

定化の効果が既に含まれているためと考えている。

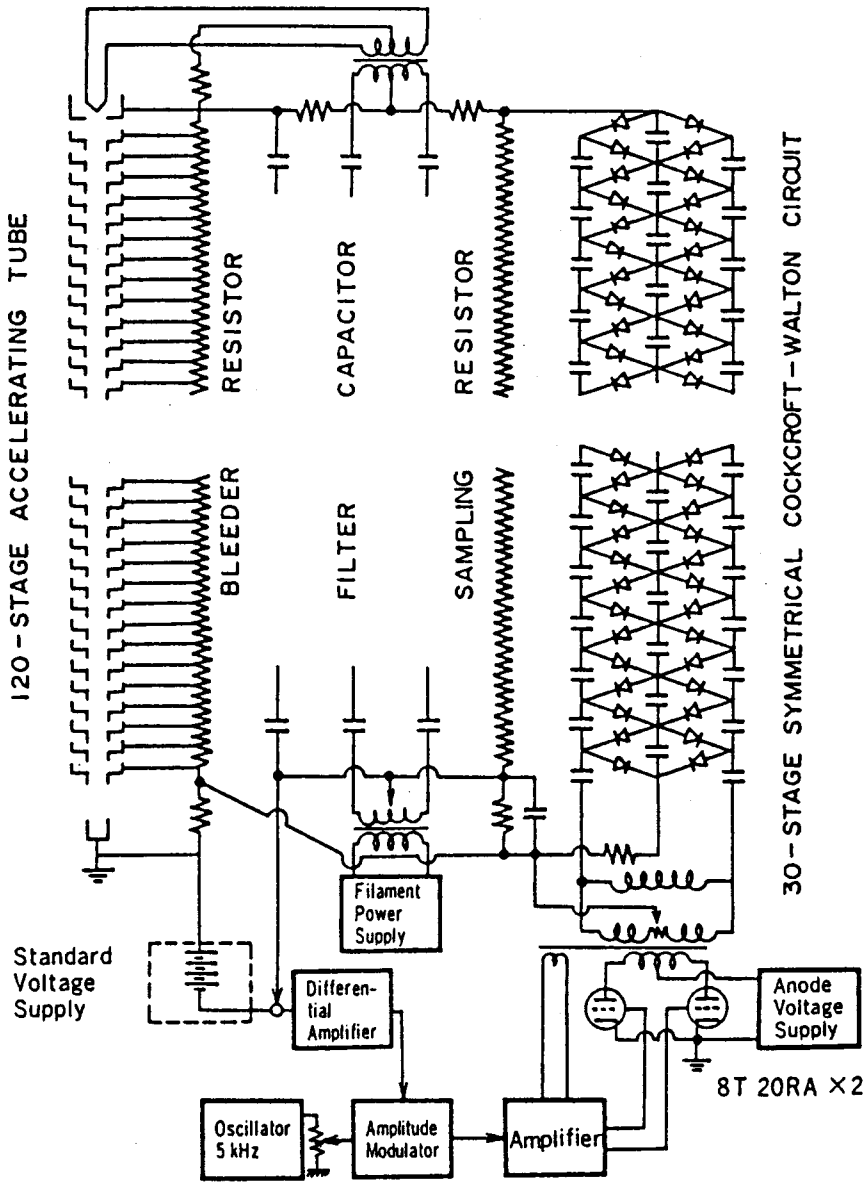


図３-１　高圧発生回路およびフィラメント点火回路

表３－１　自動電圧安定器の主な仕様　（池上通信機製AS3-20KW型）

サイリスタ型定電圧電源装置仕様			
型　式	ＡＳ３－２０ＫＷ	波形歪率	３％以下
方　式	サイリスタ制御	応答速度	０．１５秒以内
相　数	３相	効　率	９０％以上
定格周波数	６０Ｈｚ	力　率	８０％以上
周波数変動範囲	±２Ｈｚ	絶縁抵抗	ＤＣ５００Ｖ　５ＭΩ以上
定格入力電圧	ＡＣ２１０Ｖ	耐電圧	ＡＣ１．５ｋＶ　１分間
電圧変動範囲	±１５％	温度上昇	７０°以下
定格出力容量	２０ｋＶＡ	周囲温度	０～４０°Ｃ
定格出力電圧	ＡＣ２００Ｖ	相対湿度	３０～８５％
電圧調整範囲	±３％	重量	６００ｋｇ
定電圧精度	±０．４％		
負荷変動範囲	０～１００％		
負荷力率	１００％		

表３－２　自動電圧安定器取り付け前後の電圧安定度

測　定　項　目	定電圧電源装置取り付け前	定電圧電源装置取り付け後
商　用　電　源　電　圧	1.2×10^{-3}	2.4×10^{-4}
Ｃ-Ｗ駆動電源陽極電圧	1.5×10^{-3}	3.0×10^{-4}
加速電圧サンプリング端子		
（帰還制御　ＯＦＦ）	8.0×10^{-4}	2.0×10^{-4}
（帰還制御　ＯＮ）	4.0×10^{-5}	2.0×10^{-5}

3－2－2　負帰還ループによる安定化

図3-1に示すように、C-W回路駆動用電力増幅器では増幅器自身の安定化のために、C-W用高圧変圧器の三次巻線より負帰還制御がなされている。この帰還回路の閉ループ利得A_{NFB}は次式で表わされる。

$$A_{NFB}=A/(1-A\ \gamma) \qquad (3-1)$$

ここでAは増幅器の利得、γは帰還回路の帰還比である。帰還の開ループ利得Aγが大きくなるにつれて、A_{NFB}は$1/\gamma$に近づき、Aの変動に影響されずに安定度が改善される。しかし、実際の帰還回路は開ループ利得を増大させると、高い周波数帯域で増幅器の位相の逆転のため発振を起こす。

低域で高い開ループ利得を実現する方式として、帰還回路に低域フィルターを挿入して高域でのループ利得を低下させるのが一般的である。しかし、フィルター回路は一般に利得の変化と共に位相も変化する。安定度の向上を図るためには、帰還回路全体の利得、位相の周波数特性を適正化するよう定数を設定する必要がある。そのために、図3-2に示す5種類のフィルター回路について、その利得および位相の周波数特性を計算して比較する。結果を図3-2に示す。

これまでは①で示す低域フィルター回路が用いられていた。これは高域で利得が低下するが位相も大きく変化し、帰還回路には都合が悪い。これに比べて③で示すフィルターは高低域での利得の低下は他のフィルターより小さいが、位相の変化はより小さく高低域では位相は変化しない。フィルター②,④,⑤は比較のため示したもので②,④は帯域フィルター、⑤は二段低域フィルターである。図3-3はフィルターを用いない場合の負帰還ループの周波数－利得・位相特性の実測値に、このフィルター①,③および 減衰器⑥の特性の計算値を加えて、負帰還ループの特性を求めたものである。ここで①,③,⑥の5kHzにおける減衰率はほぼ同じにしてある。

それぞれの負帰還ループの特性を比較してみると、位相が360°変化する周波数における（10kHz付近）ループ利得は、①,③,⑥がそれぞれ－17，－20，－16dBである。従来のフィルター①の場合に比べて③の場合は3dB利得余裕が大きいことがわかる。またループ利得が0dB（6kHz付近）の位相余裕で比

較しても、①が４０°、③が４５°で、従来のフィルター①の場合に比べて③の場合が余裕が大きい。フィルター③は位相変化が少ないため、駆動周波数５kHzにおいて約３dB 帰還利得を大きくできることが分かる。

これらの帰還フィルター回路とこれを用いたときの高圧安定度の関係について検討する。実測した５kHzに対する開ループ利得の発振限界値は、これまでのフィルター①では２４．５dB、今回採用したフィルター③では２７．５dBであった。約３dBループ利得を大きくできた。この値は図３-３での計算結果とも一致する。これによって高圧安定度も２×１０$^{-5}$から１．４×１０$^{-5}$に約３ｄＢ改善された。

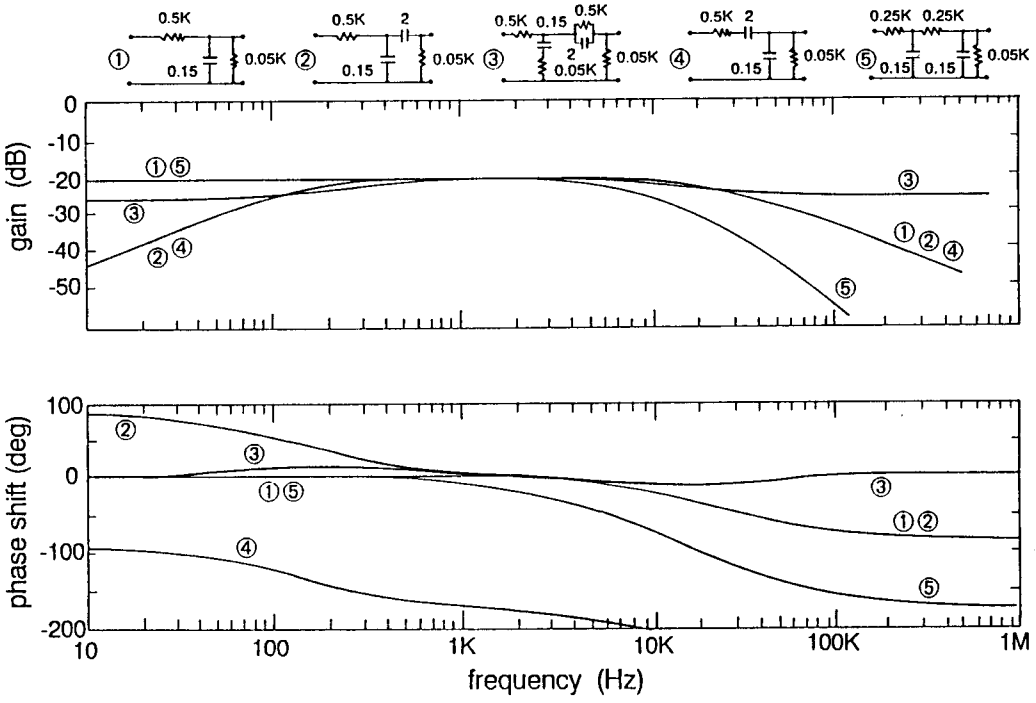


図３-２　各種フィルターとその周波数特性

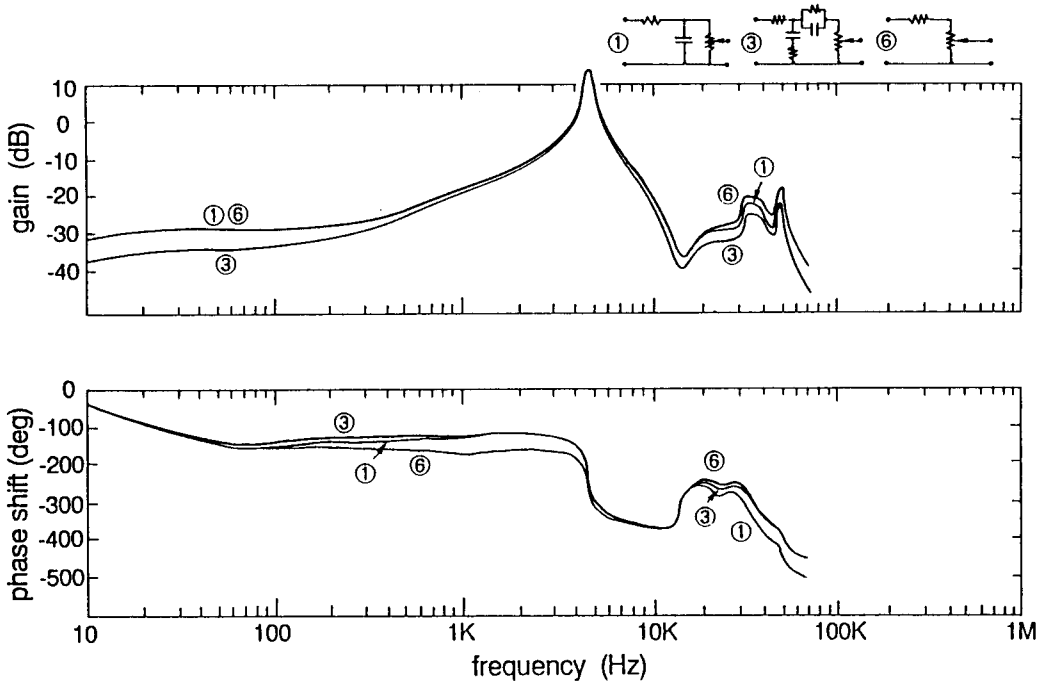


図３－３　フィルター挿入後の帰還回路のボーデ線図。 ただし、フィルターを用いない場合の帰還ループ特性の実測値と、フィルター①③ および減衰器⑥の特性の計算値から求めたもの。

３－３　洩れ磁束によるビーム偏向の補償 [18][24]

３－３－１　原因と周波数成分

電子銃から出た電子は加速管内を通過し、電顕鏡体照射レンズ系で集束されて試料に照射される。HU-2000型超高圧電顕の場合、この距離は図２－２に示すように６．６ｍにもなり、通常電顕の５０cm程度に比べて１０倍長い。そのために、外部交流磁束によるビームの偏向が問題となる。一つの高圧タンクに加速管と加速電圧発生回路を納める本加速系では、加速管は高圧発生回路（C-W回路） の中心に位置している。加速管領域に漏洩する磁束として、 （１） C-W回路よりの

洩れ磁束（５kHz）と （２）フィラメント電力伝送回路よりの洩れ磁束（１００kHz）がある。さらに、（３）各種の商用周波数源からの洩れ磁束（６０Hz）も侵入する。これらの洩れ磁束は対称Ｃ-W回路のバランス調節や、Ｃ-W回路と加速管の間の磁気シールドのための加速管電極材料と形状の工夫により、ある程度軽減できる。しかし、完全に洩れ磁束を消し去ることは困難である。これらの洩れ磁束は基本周波数成分がほとんどで、高調波成分は一般に小さい。

３－３－２　フィラメント直流点火による改善

電子銃陰極用のフィラメント電源は加速電圧と同じ電位を持つ。この電位まで電力を伝送する回路がフィラメント電力伝送回路である。 図３-４に示すように、高圧発生回路のフィルターコンデンサーを利用している。回路の低圧側より高周波電力（１００ kHz）を供給し、高圧側でこれを整流し、フィラメントに供給する。このとき、フィルターコンデンサーを流れる高周波電流により磁束が発生し、電子ビームが偏向される。試料上に集束された電子ビームの位置やＥＥＬＳのスペクトルの位置が変動する。

これは、 電子銃部にＮｉ-Ｃｄ電池を組み込み、それによってフィラメントを点火することで除去できる。充電は電顕を使用していない時に行い、完全充電後は約８時間の点火が可能である。

３－３－３　鏡体部での振り戻しによる改善

加速管領域の洩れ磁束によるビームの偏向は、鏡体側に偏向器を取り付けて補償する。すなわち、洩れ磁束による偏向に同期させて、逆方向に同じ大きさだけ偏向する。 図３-５にそのブロック図を示す。偏向の原因となっている周波数成分を高圧発生回路の発振器、交流点火の場合のフィラメント点火回路の発振器、商用電源ラインから取り出す。それぞれの振幅と位相を可変にするため、それぞれ独立した増幅器と移相器を通す。これらを重畳して電顕の照射系に組み込んだ偏向コイルに加える。振り戻し偏向の振幅および位相の調整は、電顕像モードで蛍光板上のビーム形状を観測しながら行う。ビーム照射面積が最も小さくなるように増幅器の利得と移相量を合わせる。打ち消しは基本波成分のみで、高調波成分は残留するがその影響は小さい。

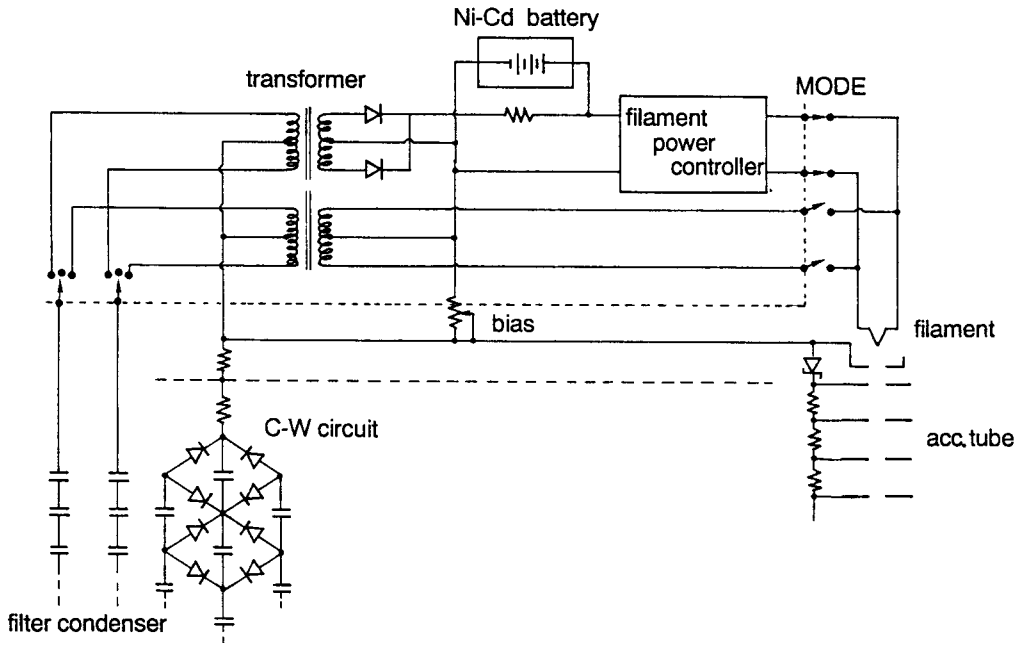


図３－４　フィラメント点火回路

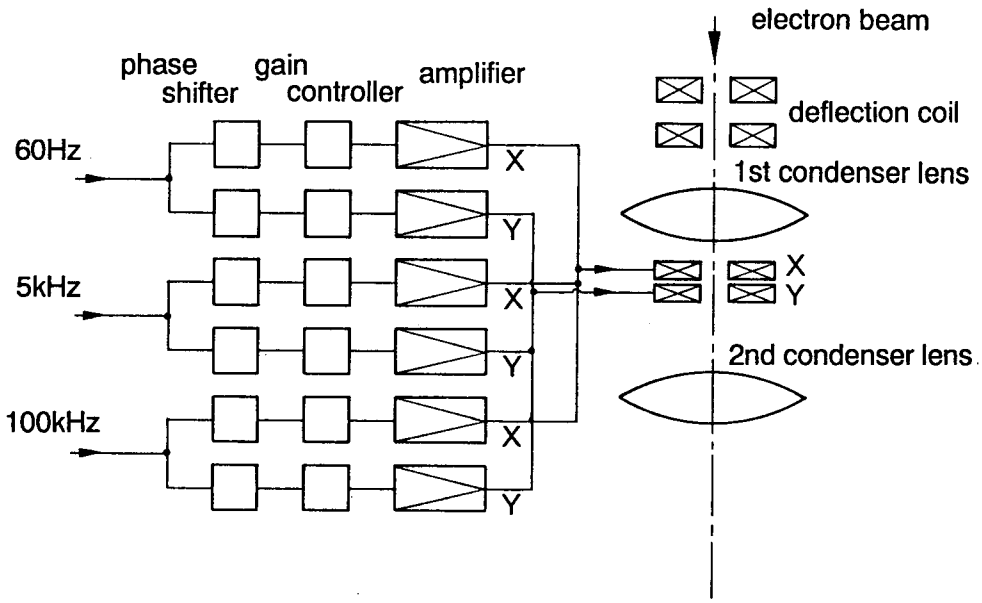


図３－５　洩れ磁束による偏向の補償回路ブロック図

各周波数成分の打ち消しと、電顕像モードで観測した電子ビーム形状の関係を図３-６に示す。（ａ）は補償しない場合、（ｂ）は５kHzのみ補償した場合、（ｃ）は１００kHzのみ補償した場合、（ｄ）は５kHz，１００kHz，６０Hz 全部を補償した場合、（ｅ）はフィラメントを電池で点火し、５kHz，６０Hzを補償した場合である。ビームの偏向は５kHzと１００kHzが主成分で６０Hz成分は小さい。図３-６の（ｄ）と（ｅ）のビーム形状がほぼ等しいことより、補償回路により１００kHz成分も打ち消すことができることが分かる。他の周波数成分の偏向もほぼ打ち消され、プローブビームの輝度は補償回路取り付け前より ２．４倍上昇した。補償後のビーム輝度は５００kVで 3×10^{6}A/cm^{2}sr、２MVで 2×10^{7}A/cm^{2}srとなった。これらの値は２７００Kのタングステンヘァピンフィラメントの理論値のおよそ５０％である。

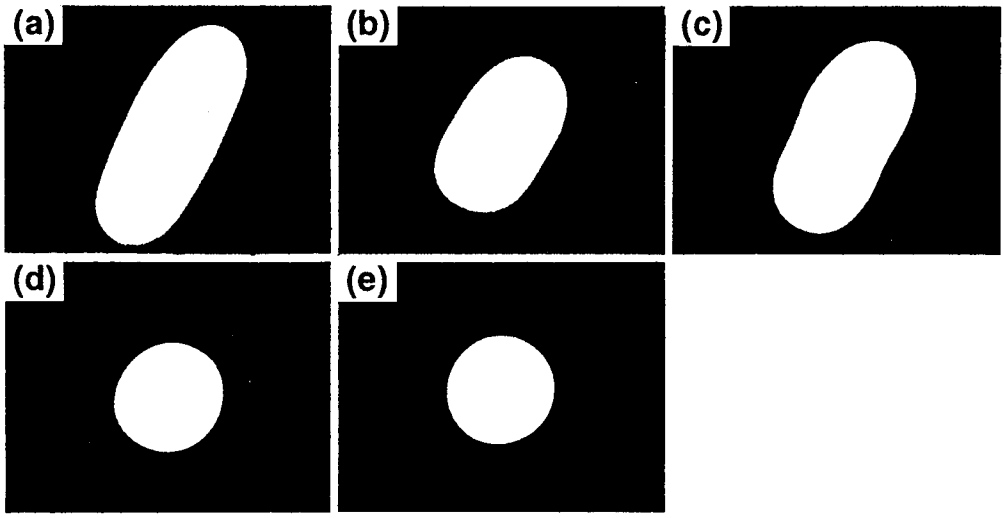


図３-６　ＴＥＭ像として観測した電子ビームの偏向補償効果
（ａ）は補償しない場合、（ｂ）は５kHzのみ補償した場合、（ｃ）は１００kHzのみ補償した場合、（ｄ）は５kHz，１００kHz，６０Hz全部を補償した場合、（ｅ）はフィラメントを電池で点火し、５kHz，６０Hzを補償した場合。

３－４　偏向成分を含むときのビーム径の測定法［25］

ＳＴＥＭやＥＥＬＳでは、プローブビーム径の計測は空間分解能やエネルギー分解能を決める上で重要な項目である。いま、電子ビームが交流磁束によって偏向されている場合を考える。ビームの位置が時間的に変動し、もし、時間平均された手法でビーム径を計測すると、本来のビーム径よりも大きい値となる。ここでは、ビーム径の大きさとビームの偏向量を分離して計測する方法を示す。

図３-７はその測定系である。偏向器を用いて測定しようとする電子ビームがナイフエッジを横断するように走査する。この走査信号をオシロスコープのＸ軸に、ナイフエッジの後方で蛍光板と光電子増倍管によって検出したビームの強度をＹ軸に入力する。走査時間をビームの偏向の周期に比べて十分長く選ぶ。このとき、図３-８（ａ）に示すような「周期的に振動するＳ字曲線」が得られる。図３-８（ｂ）は６０Hzで偏向されているビームを測定した例である。ナイフエッジでの偏向器感度[m/V]を予め求めておくことによって、波形の包絡線の傾きからビーム径 "a" が求められ、また、二本の包絡線の間隔から ビーム偏向量 "b" の走査方向成分が決まる。表３-３に ａ＜ｂ， ａ～ｂ， ａ＞ｂにおける測定例を示した。

ナイフエッジはビーム径が μm程度より大きい場合は通常の機械加工のものが使用できるが、それより小さくなるとビームの透過などの影響が問題となり使用できない。この場合のナイフエッジの代わりに、Ｍｏ酸化物などの結晶の直線部分、結晶粒界、金などの球状粒子が用いられる。直径１０nm程度の小さいプローブビームの計測では、測定で得られた値の信頼性の検討も必要となる。

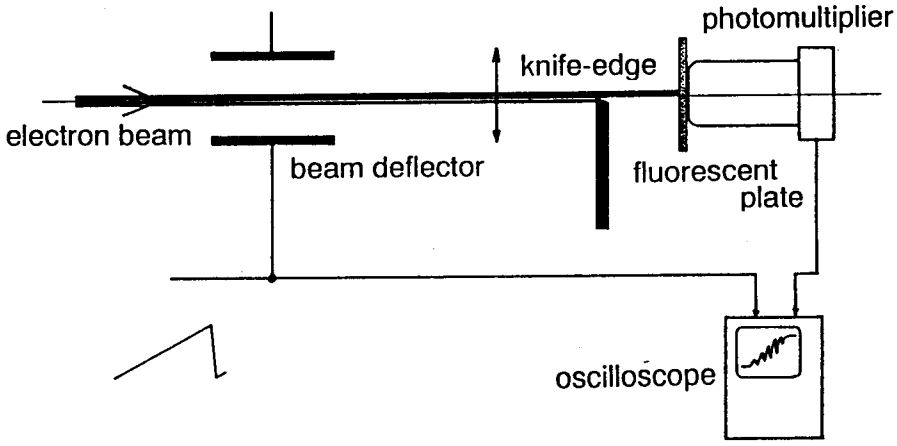
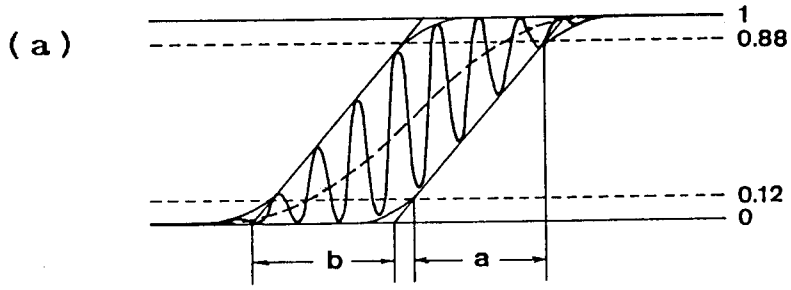


図３－７　　ナイフエッジ法によるビーム径測定系



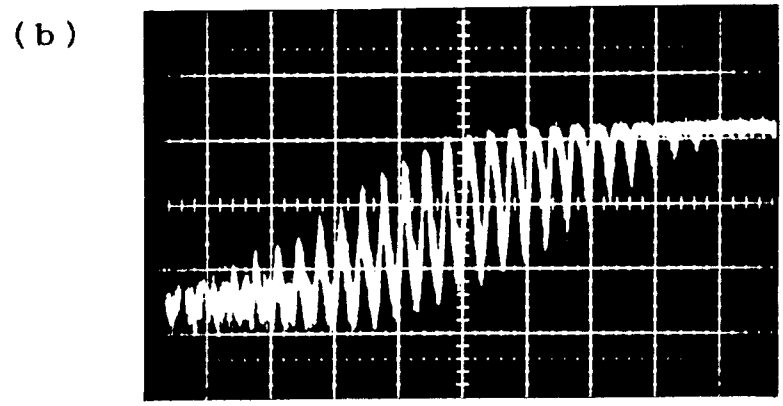


図３－８（ａ）　ナイフエッジによるＳ字曲線
（ｂ）　実測したＳ字曲線の一例

表３－３　偏向成分を含むときのビーム径"ａ"と偏向成分"ｂ"の測定例

	a＜b		a～b			a＞b
a（μm）	１７３	１６６	１３０	４８	４５	３９
b（μm）	３１４	２０６	１１５	４０	５０	２４

３－５　むすび

本章では、超高圧電顕ビームのエネルギー安定化およびビームの位置変動補償について述べた。また、ビーム径と偏向量を分離して計測する方法について記述した。

①加速電圧の安定化を目的として、商用電源安定化のため自動電圧安定器を取り付けた。その結果、Ｃ-Ｗ回路駆動電源の安定度が約１２dB改善された。

②Ｃ-Ｗ回路駆動電源の負帰還安定化回路の低域フィルター回路を改善して、開ループ利得を３dB増加させた。これにより加速電圧安定度も 2×10^{-5} から 1.4×10^{-5} に３dB改善された。

③フィラメント電力伝送回路よりの洩れ磁束によるビーム偏向およびビームエネルギー変動を避けるため、フィラメント点火を電池を用いた直流点火に改造した。

④他の洩れ磁束によるビーム偏向は鏡体部に取り付けた偏向器で振り戻した。これにより、偏向量はほぼ補償され、ビーム輝度も理論値の約５０％にまで向上した。

⑤ビームが交流偏向されている場合、ビーム径と偏向量をナイフエッジを用いて測定し、これらを分離する方法を示した。

第４章　並列検出ＥＥＬＳにおける加速電圧変動の負帰還補償　[20][21]

４－１　まえがき

第３章では、加速電圧の安定化およびビーム位置の安定化について示した。しかし、超高圧電顕の場合、加速電圧変動を数eV以下にすることは技術的にも、経済的にも困難が多い。残存する加速電圧の変動により分光器のスペクトル位置が変動する。この変動の周波数成分はドリフト、C-W駆動電源のリップル（５kHzとその高調波）、電源周波数（６０Hzとその高調波）である。この変動量を検出器の前方に取り付けた２種類の偏向器で振り戻す。

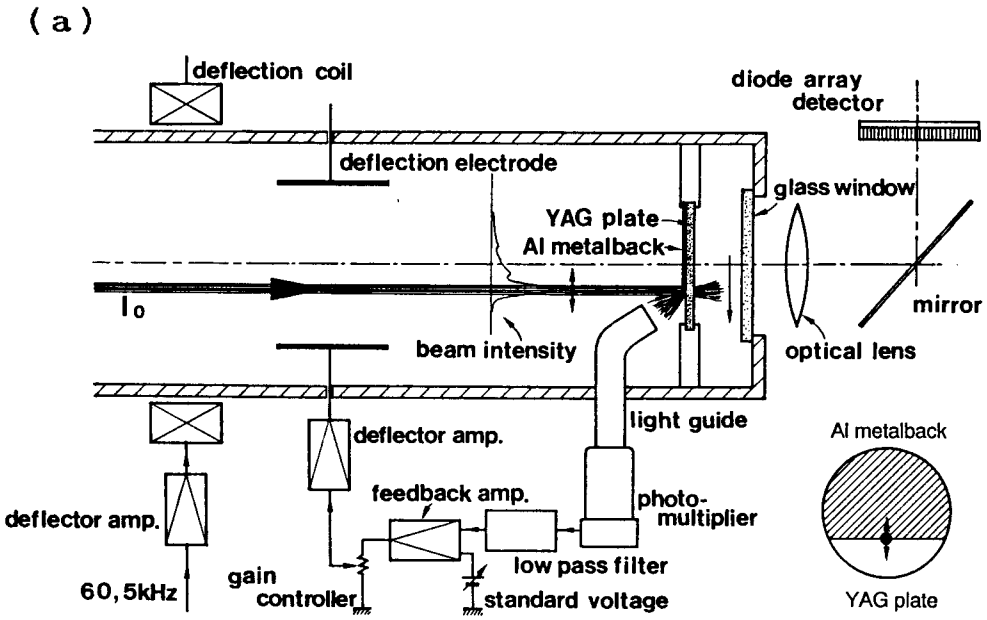
補償回路として、偏向コイルに振り戻し電流を印加する開ループ制御回路と偏向板を用いた帰還制御回路で構成する。この帰還制御を行なうため、新たに考案したスペクトルと位置変動を同時に測定できる蛍光板を取り付ける。次に、これらの制御によるエネルギー分解能の改善について、その測定結果を示す。帰還制御に際しては、帰還利得に最適値が存在することが示され、その原因がショット雑音の影響であることを帰還回路解析から明らかにする。

４－２　補償回路の構成 [20][21]

加速電圧変動や電子ビーム偏向に伴うスペクトルの移動を補償するため、図４-１（ａ）に示す偏向器系を並列検出ＥＥＬＳ装置に取り付けた。超高圧ＳＴＥＭからの電子は分光器と四極子を通って ＹＡＧ（Yttrium Aluminum Garnet）蛍光板に到達する。その際、加速電圧が変動したり、軌道上に洩れ磁界が存在すると蛍光板上のスペクトルの位置が変動する。スペクトルの位置変動を補償するため二つの偏向器を用いる。変動の基本波成分には偏向感度が高い磁界偏向器を用い、開ループ制御を行なう。加速電圧のドリフトや高調波成分を補償するため、応答速度の速い静電偏向器を用いて帰還制御する。静電偏向器の周波数帯域は１０MHz以上ある。

開ループ制御は商用電源ライン（６０Hz）およびC-W回路の駆動電源（５kHz）からの信号を増幅器と移相器を通して偏向コイルに加える。その際、スペクトルのゼロ損失ピークの幅が最も小さくなるように利得と位相を調節する。

次に帰還制御を行なう。そのためにはスペクトルの位置を検出する必要がある。



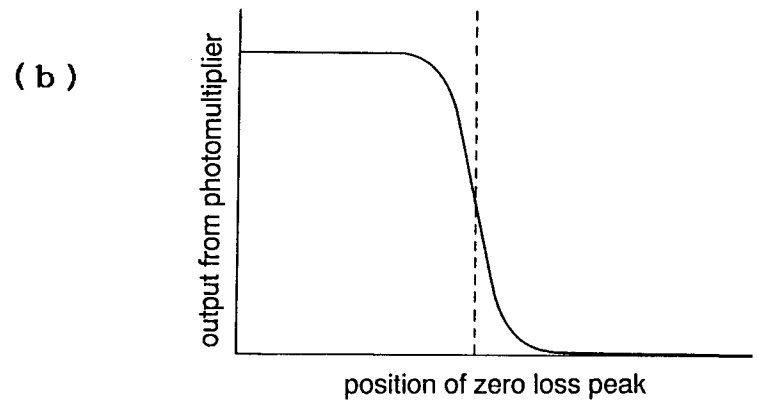


図４-１（ａ）　ＥＥＬＳにおける加速電圧変動の補償回路系
（ｂ）　ゼロ損失ピークの位置と光電子増倍管の出力の関係

スペクトルの測定と同時にこの位置変動も検出できるように、ＹＡＧ蛍光板を工夫した。図４-１（ａ）に示したＹＡＧ蛍光板は直径１０㎜、厚さ５０μmで、スペクトル測定面にガラス支持基板を用いずに固定されている。図の右下に示すように、その片面のみ、約３／４は厚さ約０．１μmのアルミでメタルバックされている。メタルバックした面はビームの入射側で、メタルバックの境界線は分散と直角方向である。また、蛍光板のメタルバックされている部分をスペクトルの損失エネルギー側に対応させて取り付ける。

ＹＡＧ蛍光板の透過面側での光強度は光学レンズによって並列検出器上に結像され、ＥＥＬＳスペクトルの測定ができる。

一方、ＹＡＧ蛍光板の入射面側に放射される光強度はスペクトルの位置変動を検出するのに利用する。入射側では、ＹＡＧ蛍光板で発光した光はメタルバック領域ではさえぎられ、メタルバックがない部分からのみ放射される。この光をライトガイドで光電子増倍管の光電面に導き、光強度を電気信号に変える。今、ゼロ損失ピークがメタルバックの境界線を移動すれば、この移動距離に応じて光強度が変化する。 ゼロ損失ピークの位置と光電子増倍管の出力の関係は 図４-１（ｂ）に示したようなＳ字曲線になる。このＹＡＧ蛍光板を用いると、透過面でスペクトルを観測しながら、ゼロ損失ピーク（スペクトル）の位置変動を同時に検出できる。

帰還制御をするためには、この光電子増倍管の出力を低域フィルター、帰還増幅器、偏向器増幅器を通して偏向電極に負帰還する。この回路の帰還ループ利得Ａ(ω)の大きさは負帰還回路増幅器中の利得制御回路により変化できる。また、低域フィルターの帯域 ω_c（利得の３ｄＢ低下する周波数で定義）の値も可変できる。

４－３　開ループ制御特性［21］

偏向コイルを用いた開ループ制御の結果を示す。図４-２は図４-１（ａ）の光電子増倍管出力をスペクトル分析器で測定した結果である。スペクトルの位置変動の周波数成分が示されている。商用周波数６０Hzについては１５次高調波まで、５kHz成分については８次高調波まで示してある。 ［黒棒］は開ループ制御前の値であり、［白棒］は開ループ制御後の値である。 基本波成分（６０Hz、５kHz）

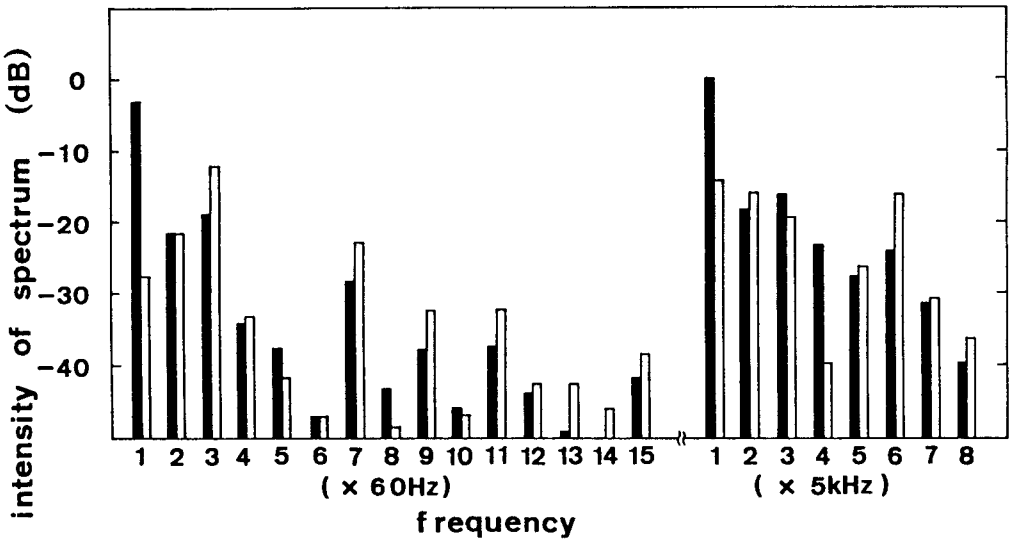


図４－２　開ループ制御によるビームの振れ周波数成分の改善
［黒棒］制御前、［白棒］制御後

はおよそ２０dB減少していることが読み取れる。しかし、かなりの大きさの高調波成分が残留している。開ループ制御だけ行ったとき、ゼロ損失ピークに対して測定したエネルギーの半値幅は、９．３eVから５．７eVに改善された。

４－４　帰還制御特性［20][21]

４－４－１　検出系

スペクトル位置変動の検出系の特性を調べる。図４-１（ｂ）に示した、ゼロ損失ピーク位置と光電子増倍管出力の関係の実測例を図４-３（ａ）に示す。ここで、ゼロ損失ピークがメタルバックのない位置にあるときの出力を１で表す。この測定において、ゼロ損失ピークの持つ位置変動（６０Hz や５kHz成分）の影響を避けるため、掃引速度は十分速く選んである（０．２μs/μm）。ゼロ損失ピークがメタルバックの境界線を横断したとき、波形は１からほぼ０に減少する。

このカーブより、ゼロ損失ピークの幅（ビーム径）は約２００μmであることが分かる。（分光器分散は５０μm/eV）。

図４-３（ｂ） はオシロスコープで観測したこの系でのゼロ損失ピークの位置変動を示す波形である。６０Hz成分にはかなりの高調波が含まれていることが分かる。

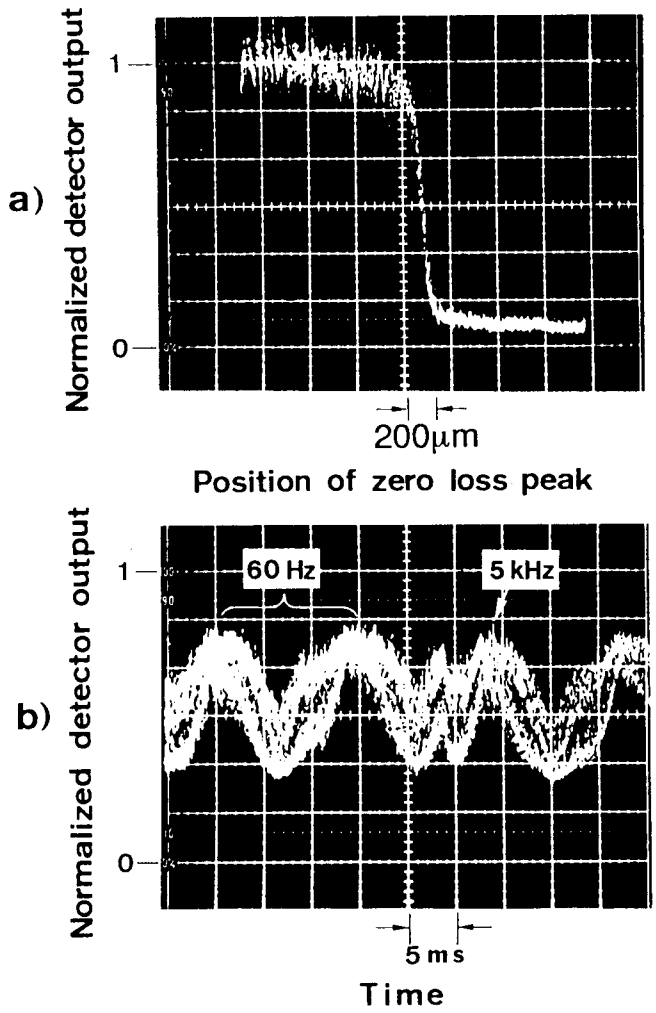


図４-３（ａ）ＹＡＧ蛍光板上のゼロ損失ピーク位置と光電子増倍管出力の関係
（ｂ）オシロスコープで観測したゼロ損失ピークの位置変動を示す波形

このＹＡＧ蛍光板を用いて測定したＥＥＬＳスペクトルは、メタルバック境界で光検出効率が変化するため、スペクトルに段差が生ずる。メタルバックした側の出力が約１．６倍大きくなる。これは蛍光板全体の検出効率をあらかじめ測定しておくことにより、後で補正できる。図４－４はゼロ損失ピークの形を補正した例である。

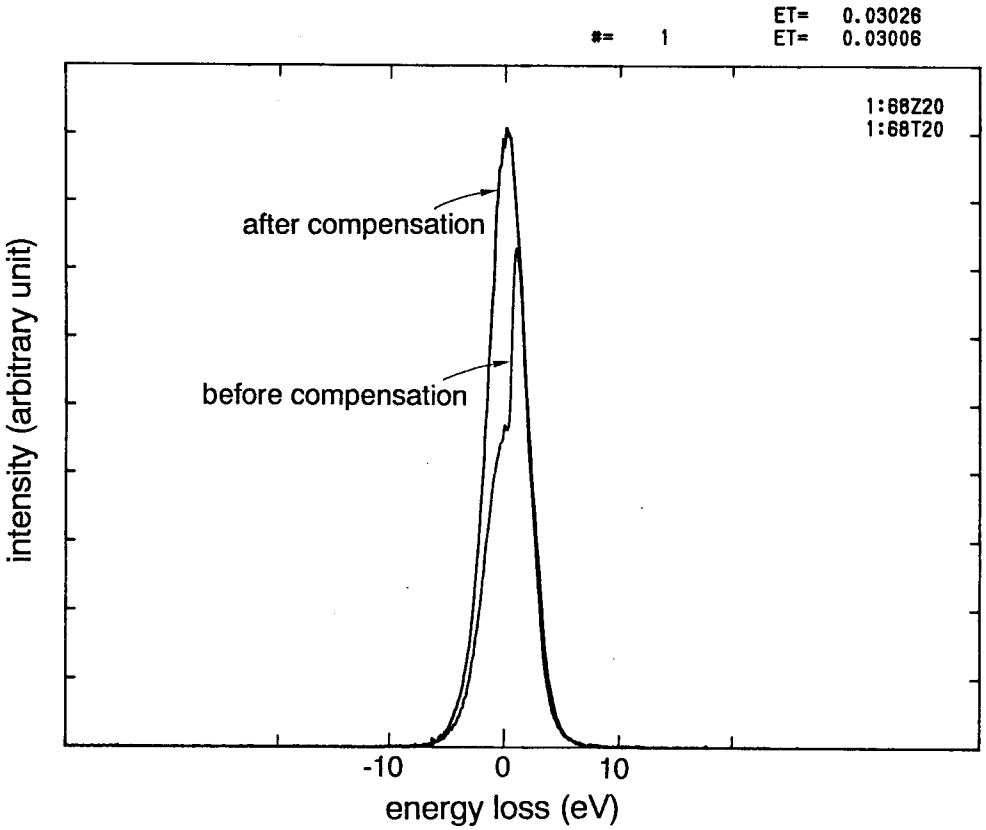


図４－４　ＥＥＬＳスペクトルにメタルバック境界で段差が生じた場合の補正例

4－4－2　特性測定

帰還回路の帰還ループ利得A(ω)と位相シフトφ(ω)の測定値を 図4-5に示す。帰還回路の遮断周波数ω。は、低域フィルター中のコンデンサーを切り換えることにより、2kHz、3kHz、15kHzに可変できる。 低域フィルターを用いないときは70kHzである。

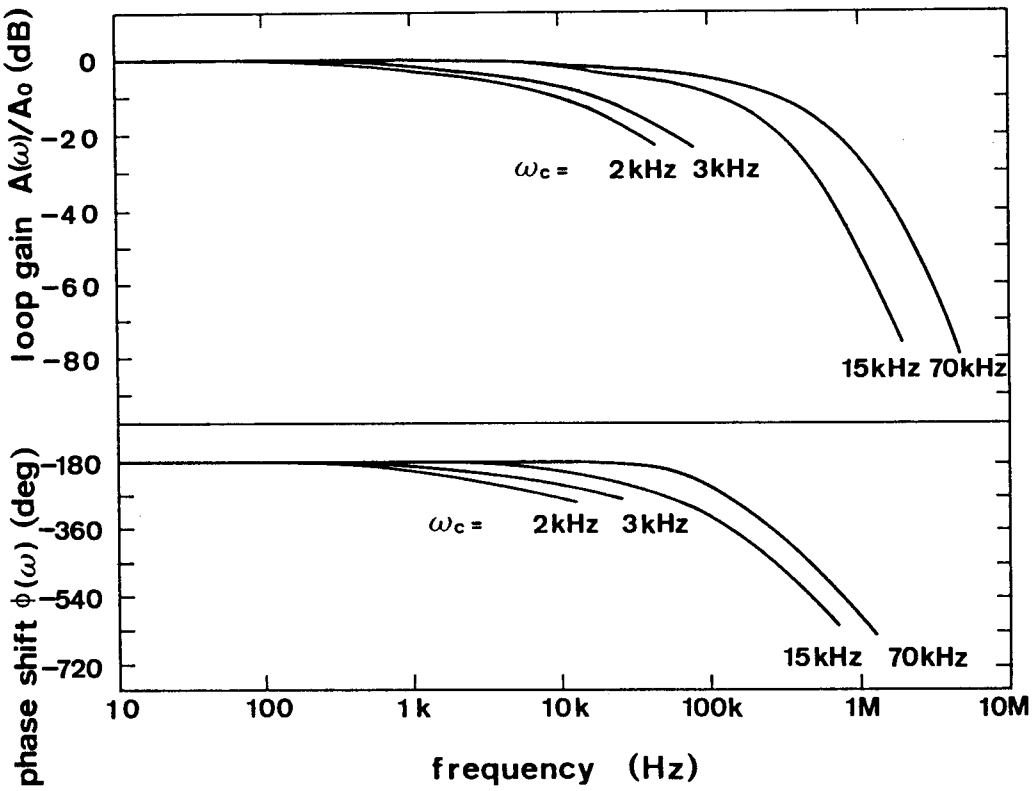


図4-5　負帰還回路の帰還ループ利得A(ω)と位相シフトφ(ω)の実測値

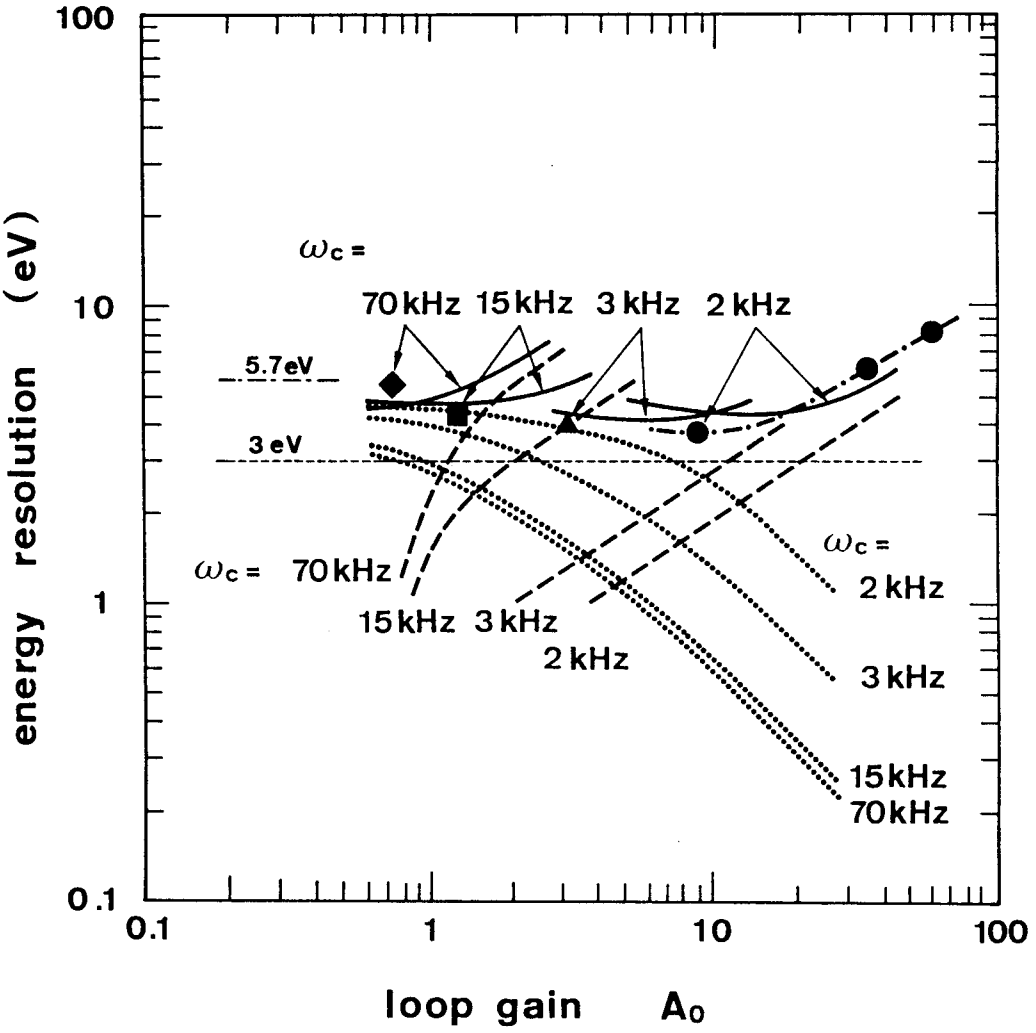


図４－６　帰還ループ利得Ａ₀とエネルギー分解能の関係
●▲■◆印は測定値、実線は計算値である。

図４－６ は帰還制御を行った場合のゼロ損失ピーク半値幅をエネルギー分解能に換算した値である。 この図の横軸は低周波領域ω＝０での帰還ループ利得Ａ₀である。●▲■◆印はそれぞれ帰還回路の遮断周波数が ω꜀＝２kHz、３kHz、１

5kHz、70kHzのときの測定値である。●印およびこれを結ぶ太鎖線で示したように、帰還ループの利得変化に対してエネルギー分解能に最小値が存在している。▲■◆については最小値のみを表示してある。　帰還帯域幅により、最小となるA_0の値が異なっている。ω_cが2kHzのとき、最も高い分解能が得られ、3.8eVの値を得た。この値は開ループ制御のみの値のおよそ2／3である。

この系の帰還制御においてその帰還利得に最適値があることが示された。これはこの系が持つ雑音と帰還位相の変化のためと予想される。これを明らかにするために次節で回路解析を行なう。

4－4－3　ショット雑音を含む制御系の解析

この系の解析にあたって、制御対象となるビームの振れの成分だけでなく、微小プローブ電流が持つショット雑音および回路の増幅器雑音も考慮する。図4-1（a）の回路を伝達関数を用いて表示すると図4-7となる。ここで　$X(\omega)$, $Y(\omega)$, $N_1(\omega, I_e)$ および $N_2(\omega)$ はそれぞれ $x(t)$, $y(t)$, $n_1(t, I_e)$, $n_2(t)$の周波数スペクトルである。

$x(t)$　　は偏向器入射面でのビームの振れである。この振れの大きさは帰還がないときの並列検出器のエネルギー分散の増加に対応する。

$y(t)$　　は負帰還時の蛍光板上でのビームの振れであり、並列検出器のエネルギー分散の増加に対応する。

$n_1(t, I_e)$　は検出電流の持つショット雑音の電圧換算値である。これは蛍光板に入るビーム電流I_0および検出器の量子効率DQEの積 $I_0 \times DQE = I_e$ に比例する。

$n_2(t)$　　増幅器雑音である。

$\eta(I_e)$　　は検出器の感度（ビームの振れから検出器出力電圧への変換率）である。$\eta(I_e)$は実効的ビーム電流I_eに比例する。

$G_1(\omega)$と$\phi_1(\omega)$　はフィルターを含む増幅器の利得と位相であり、その遮断周波数をω_cとおく。

$G_2(\omega)$と$\phi_2(\omega)$　は偏向器の偏向感度とその位相特性である。

ここで　X, Y, G_1, G_2, N_1, N_2, ϕ_1, ϕ_2 はωの関数である。　η, N_1

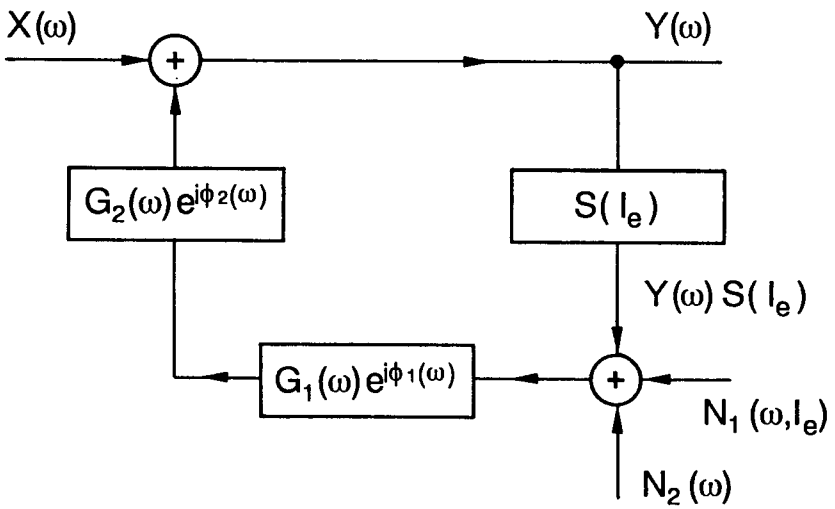


図４－７　帰還回路の伝達関数表示

はI_eにも依存する。図４－７の制御系を式で表すと次のようになる。

$$Y(\omega)=X(\omega)+G_1(\omega)G_2(\omega)\exp(j\phi(\omega)) \times\{Y(\omega)\eta(I_e)+N_1(\omega,I_e)+N_2(\omega)\} \qquad (4-1)$$

帰還ループ利得として

$$G_1(\omega)G_2(\omega)\eta(I_e)=A(\omega,I_e)\ ,\quad \phi_1(\omega)+\phi_2(\omega)=\phi(\omega) \qquad (4-2)$$

で定義する。$X(\omega), N_1(\omega,I_e), N_2(\omega)$ に相関がないと仮定する。

式（4-1）より

$$|Y(\omega)|^2 = |1/(1-A(\omega, I_e)\exp(j\phi(\omega)))|^2 \times |X(\omega)|^2$$

$$+ |(A(\omega, I_e)\exp(j\phi(\omega)))/(1-A(\omega, I_e)\exp(j\phi(\omega)))|^2$$

$$\times 1/\eta^2 \times (|N_1(\omega, I_e)|^2 + |N_2(\omega)|^2)$$

$$\equiv W_x(\omega, I_e) + W_n(\omega, I_e) \qquad (4-3)$$

式（4-3）の第1項は 偏向器入射面でのビームの振れの周波数スペクトル$|X(\omega)|^2$ の帰還制御後のパワースペクトルであり、第2項は雑音成分に対するものである。ここで、ビームの振れの大きさを次式のように定義する。

$$y_{x\ rms}^2 = \int W_x(\omega, I_e)d\omega \qquad (4-4)$$

$$y_{n\ rms}^2 = \int W_n(\omega, I_e)d\omega \qquad (4-5)$$

$$y_{rms}^2 = y_{x\ rms}^2 + y_{n\ rms}^2 \qquad (4-6)$$

式（4-6）で示した帰還制御後のビームの振れ y_{rms}^2 が帰還ループ利得 $A(0)=A_0$ およびその遮断周波数ω_cにどのように依存するかを考察する。

$X(\omega)$ として、開ループ制御時の値である図4-2の白棒のスペクトルを用いる。 ショット雑音のパワースペクトルを $|N_1(\omega, I_e)|^2=2eI_e$ で表す。このシステムでは、増幅器雑音 N_2 はショット雑音 N_1 より十分小さく N_2は無視する。 さらに、帰還ループ利得$A(\omega, I_e)$ および位相 $\phi(\omega)$ として図4-5を用いる。これらの値を代入すると y_{rms}^2 は帰還ループ利得A_0 の関数となる。$\sqrt{y_{rms}^2}$ をエネルギー分解能に変換した値を図4-6に書き加えた。太点線はビームの振れに起因する成分の帰還制御後の大きさである。式（4-4）より計算でき、帰還ループ利得A_0の増加とともに減少する。 太破線はビーム電

流ショット雑音に起因する項であり、式（4-5）より計算した。この項はA_0の増加とともに増加する。

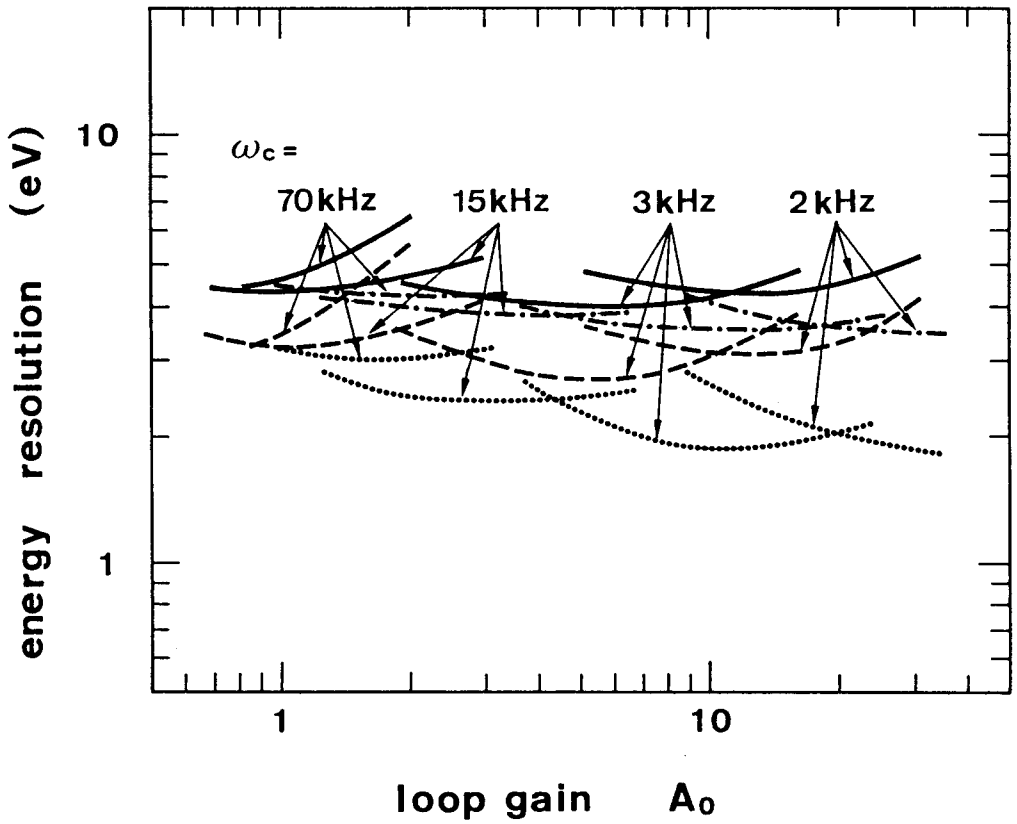


図4-8　帰還回路の位相変化がある場合と、ないと仮定した場合の帰還ループ利得とエネルギー分解能の関係

――――	位相変化なし	$\Delta E_f = 0$ eV
― ― ―	位相変化あり	$\Delta E_f = 0$ eV
―・―・―	位相変化なし	$\Delta E_f = 3$ eV
――――	位相変化あり	$\Delta E_f = 3$ eV

実測したエネルギー分解能では、これら以外に蛍光板上での発光領域の大きさによる項が加わる。この大きさは ①電子ビームの直径と ②蛍光板の発光領域のひろがりである。後者は第５章で示す蛍光板に電子が入射したとき照射領域より発光領域がひろがる現象である。細破線は蛍光板上での発光領域のひろがりをエネルギー分解能に換算した値である。太実線は以上の３項の２乗の和の平方根から求めたエネルギー分解能である。　エネルギー分解能の最小値とこれを与えるA_0の値は計算値と実測値がかなりよく一致している。

帰還回路の位相変化が帰還制御におよぼす影響を調べるため、図４-５で$\phi \equiv 0$とおいて同様の計算を行なった。図４-８の点線は位相変化がない場合である。比較のために位相変化がある場合を破線で示す。蛍光板での発光領域のひろがりΔE_fを加算すると点線と破線はそれぞれ鎖線と実線になる。 ここでは回路の遮断周波数が ２kHz, ３kHz, １５kHz, ７０kHz の場合について示した。帰還回路の位相変化を小さく選べば帰還ループ利得A_0を大きくでき、 分解能が向上することがわかる。

以上の解析より、制御対象である信号がショット雑音を持つ電子ビームで伝送される場合、帰還量に最適値があることが解明された。帰還制御系動作点の設定に役立った。

４－５　むすび

超高圧並列検出ＥＥＬＳにおける電顕加速電圧変動によるエネルギー分解能の低下を抑制するため、検出器の前に偏向器を挿入し、スペクトルの振れを補償した。その結果分解能は次のように改善された。

①基本波成分だけの開ループ制御により、エネルギー分解能に換算して ９．３eV から５．７eVに改善された。

②直流より 数十kHzまでの帯域で帰還制御することにより、エネルギー分解能が ３．８eVまで改善できた。この値は制御系の解析値４eVとほぼ一致する。

また、帰還制御に伴う次の二点について考察を行なった。

③スペクトルとスペクトルの移動量を同時に観測するためのＹＡＧ蛍光板を考案した。

④スペクトルの位置変動に対する帰還制御において、電子ビームが持つショット

雑音を考慮して帰還回路を考察し、帰還量に最適値があることを示した。これにより、帰還制御系の動作点の設定と特性改善の指針を与えた。

第５章　蛍光板における発光領域の異常広がり効果　[18][29][32][39]

５－１　まえがき

本章では、まず、蛍光板によって変換された光を光検出素子に結像するための光学系と、並列検出素子としてのフォトダイオードアレイの構造について述べる。

つぎに、蛍光板での発光領域の異常広がり現象と蛍光板支持基板からの後方散乱電子によるバックグランドの増加について、蛍光体材料、蛍光板の厚さ、支持方法との関係を調べる。最後に、発光領域の広がりの少ない蛍光板の開発について述べる。

５－２　並列検出法のための光学系と検出器の構造　[18]

ＥＥＬＳのスペクトル面から検出器（ダイオードアレイ）までの概念図を図５-１に示す。通常加速電圧の電顕では、この光学系としてファイバー結合が広く用いられている[31]。これは光の伝送効率が高い利点がある。しかし、像の拡大や縮小が難しい。また、５－４で述べる後方散乱電子を発生させる。加速電圧が高く、しかも分散をさらに拡大するために、拡大光学系を考えている我々の検出系では不適当である。ここでは、第２章で述べたように５倍の拡大率を持つ光学レンズを用いた。光学レンズは焦点距離５５㎜、開放Ｆナンバー１．４である。

蛍光板付近から発生するＸ線からダイオードアレイを保護するために、光路を反射鏡を用いて直角に曲げた。

並列検出器光学系としての分解能は光学的に較正した。蛍光板を取り付ける位置に、目盛り付きのガラス板を取り付け、光を照射した。光学レンズによってダイオードアレイ上に結像された目盛りの像は、マルチチャンネルアナライザーのディスプレーに表示される。その結果、光学系の分解能はダイオードアレイの素子個々の大きさを分解するのに十分な分解能があることが確認できた。

また、Ｘ線による影響も調べた。電子ビームを照射する通常の使用条件のもとで、光学系の途中に遮光板を入れて光路を遮断した。そして電子ビームを照射しないときと照射したときの検出器の出力を測定したところ、出力に変化は認められず、Ｘ線によるバックグラウンドの増加がないことが確認できた。

用いた検出器は Tracor Northern 社製の TN-6122型であり、これを図５-２に

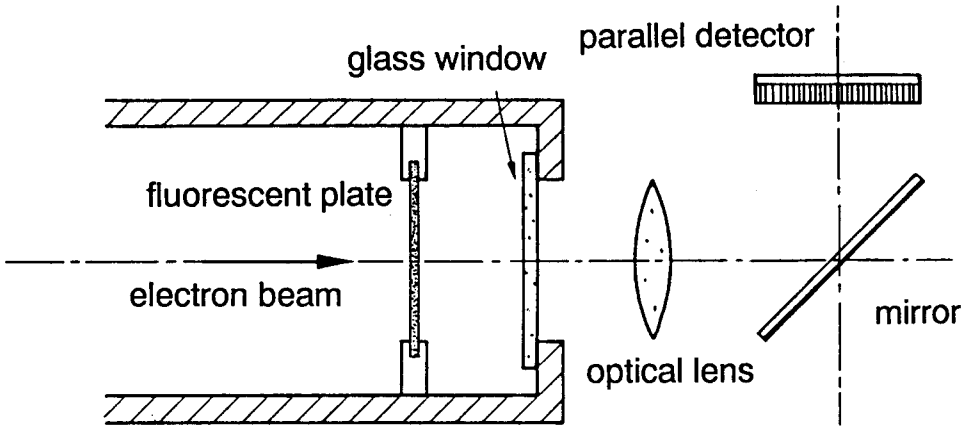


図５－１　検出器光学系ブロック図

示す。入射光は一旦電子に変換され、マイクロチャンネルプレート（M.C.P.）で増倍される。これを再び蛍光板によって光に変換し、ファイバー結合素子を経てフォトダイオードアレイに伝送される。このファイバーの一本一本はダイオードアレイの個々の素子に対応させて結合されている。フォトダイオードからの暗電流を低減するために、ペルチェ素子による冷却機構が付いている。

フォトダイオードアレイは、分散方向２５μm、その直角方向２．５mmのフォトダイオード素子が分散方向に１０２４個並んでいる。従って全体の長さは２５mmである。これらは４組のフォトダイオードアレイを交互に組み合わせて構成されている。フォトダイオードで光電変換された信号は、４組のＦＥＴスイッチを順次走査して読み出される構造になっている。１チャンネルの読みだし時間は１０μsに固定されており、全チャンネルの読みだし時間は１０msである。 測定時間は、読みだしの周期を変えることにより可変できる。最短の周期は、測定時間１０msと読みだし時間１０msの和で決まり、２０msである。 測定周期は２３００hまで広範囲に可変できる。

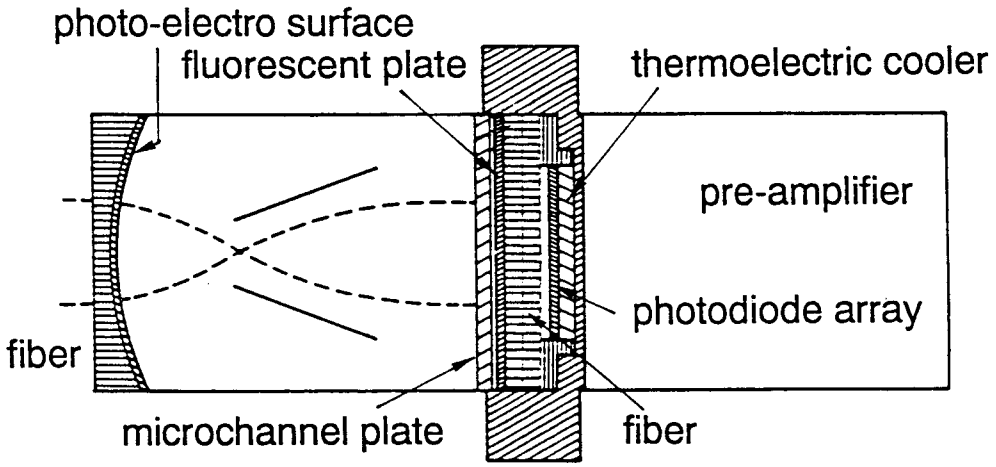


図５－２　並列検出器の構造

５－３　蛍光板発光領域の異常広がり効果　[18][29][39]

蛍光板での発光領域の大きさは、エネルギー分解能に直接影響を与える。蛍光板が薄いほどエネルギー分解能は改善されるが、感度は低下する。その最適条件を見つけるため、蛍光体材料の種類、蛍光板の厚さ、蛍光体支持構造との関連を調べる。

電子－光変換用の蛍光板としては、光に対して不透明な粉末蛍光体か、透明な単結晶蛍光体のどちらかが用いられる。ここでは粉末蛍光体として ZnSCuAl（製品名ＬＡＧＮ）粉末蛍光体、単結晶蛍光体としてＹＡＧを用いた。それらの主な特性を表５－１に示した。粉末蛍光体は平均粒径は３．７μmφである。

図５－３に示す６枚の蛍光板を用意し、蛍光体の種類、蛍光板の厚さに対する発光領域の大きさおよび発光強度の関係を測定する。粉末蛍光体に関しては次の４種類である。（i）蛍光体とコロジオン溶液を混合し、厚さ３mmのガラス板上に均一に塗布したもの。（ii）蛍光体とエポキシ樹脂（製品名アラルダイト）を

表５－１　用いた粉末蛍光体、単結晶蛍光体の特性

蛍光体種類	組　成	発光状況		10%残光時間	備　考
		発光ピーク	発光色		
ＬＡ-ＧＮ　粉末蛍光体	ZnS Cu Al	530nm	黄緑	20μs	平均粒径3.7μm
ＹＡＧ 単結晶蛍光体	$Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$	550nm	黄	80ns	

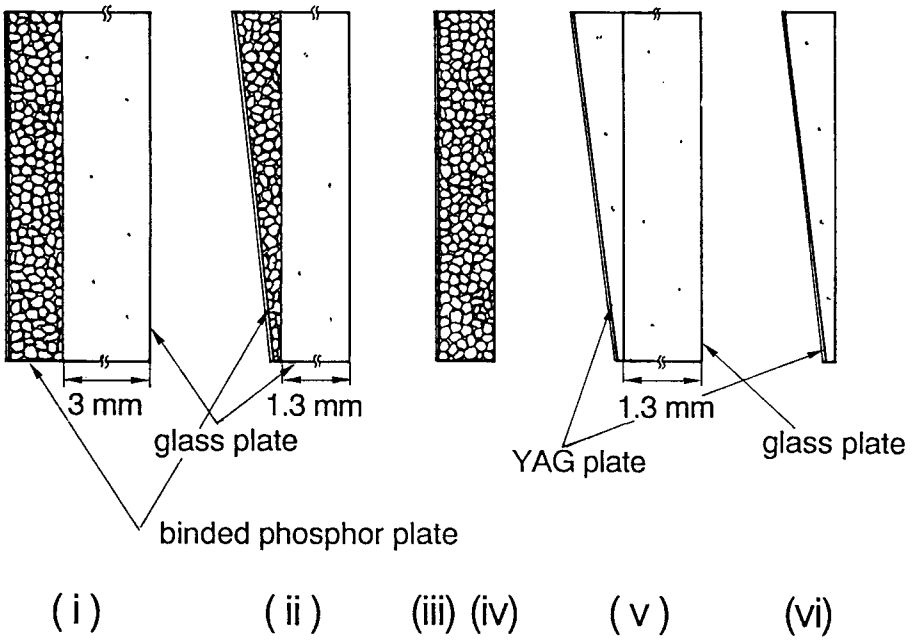


図５－３　蛍光体材料、蛍光板の厚さに対する発光領域の大きさおよび発光強度を測定するための蛍光板

混合し、厚さ１．３mmのガラス板上に塗布し、 さらに、断面が楔形になるよう研磨したもの。 その勾配は約１／２０で、厚さは１０-１００μmである。（iii）蛍光体と液体高分子接着剤 （製品名 マイクロフィルム）を混合し、均一な膜に形成した支持基板のない蛍光板。 （iv）蛍光体とエポキシ樹脂で作った（iii）と同じ構造を持つもの。 ＹＡＧ単結晶に関しては次の２種類である。（v）ＹＡＧ単結晶を厚さ１．３mm のガラス板に貼り付けて、断面が楔形になるように鏡面研磨したもの。その勾配は約１／１５で、厚さは２０-３００μmである。（vi）（v）よりガラス板を取り除いたＹＡＧ単結晶。 なお、蛍光板 （i），（iii），（iv） については厚さが違うものをいくつか用意した。これらの蛍光板の電子ビーム入射面には、光の補集効率を高めるためアルミニューム蒸着を行った。

測定は HU-2000型超高圧電子顕微鏡に取り付けた並列検出器を用いる[39]。加速電圧は５００kVである。この並列検出器に蛍光板を順次取り替えて、発光領域の大きさと発光強度を測定する。直列検出方式で測定した蛍光板上での入射ビーム径の半値幅は３４μmである。

粉末蛍光体で作った種々の蛍光板に対して、厚さと発光領域の大きさの関係を図５-４に、厚さと発光強度の関係を図５-５に示す。ＹＡＧ単結晶に対しても、同様の関係を図５-６および図５-７に示す。図５-４、図５-６中の一点鎖線は入射電子ビーム径の半値幅である。どちらの種類の蛍光板に対しても、厚さが１００μm 以上の領域では発光領域の半値幅はほぼ厚さに比例している。その比例定数は粉末蛍光体では厚さのおよそ０．８倍、ＹＡＧの場合は厚さのおよそ０．５倍程度であり、ＹＡＧの方が小さかった。厚さが７０-８０μm以下では発光領域の半値幅は、厚さを薄くしてもあまり減少しない。また、この傾向は蛍光板の種類、支持基板にそれほど依存しない。図５-５、図５-７より発光強度については両蛍光板ともに厚さに比例して増加している。

支持基板は発光領域の半値幅にはほとんど影響しないが、電子ビーム照射領域の周辺に広くかつ弱い発光を発生させる。図５-６のＹＡＧの場合について、 発光領域の大きさを次の３つの項に分離して考察する。①電子ビーム強度（振れも含む）の半値幅 =a（μm）、②蛍光板の厚さｄに比例する項ｂ=ｋｄ（μm）、（ＹＡＧの場合 ｋ＝０．５）③厚さに依存しない項 ｃ（μm）。 このとき、発光領域の半値幅 ｗ は

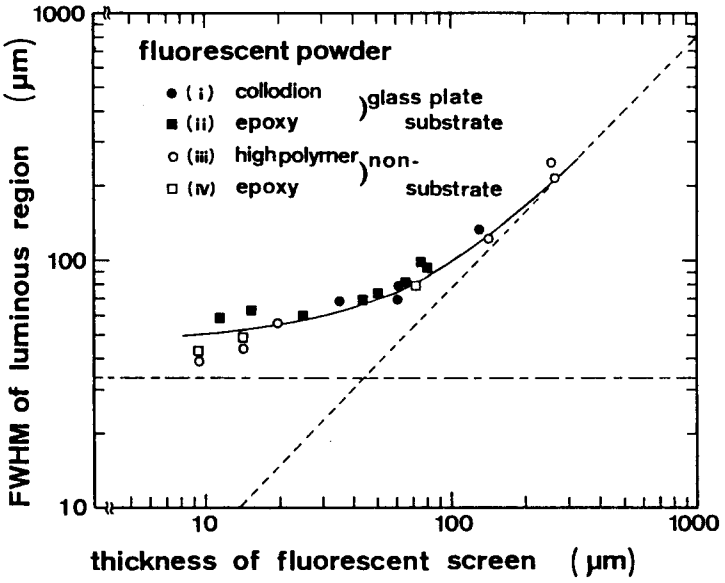


図５－４　粉末蛍光体の場合の蛍光板厚さと発光領域の大きさの関係

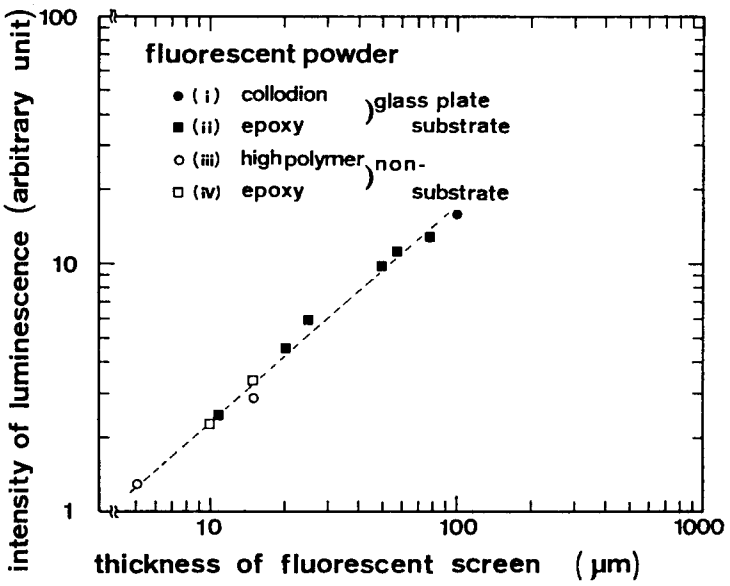


図５－５　粉末蛍光体の場合の蛍光板厚さと発光強度の関係

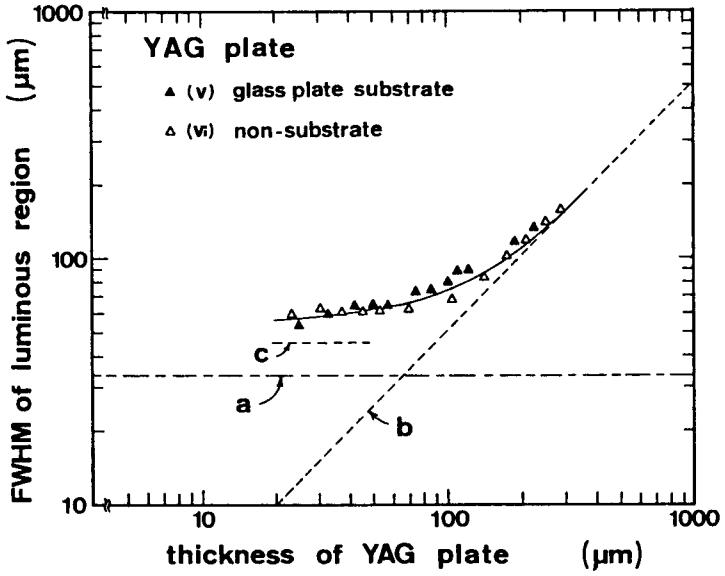


図５－６　ＹＡＧ単結晶の場合の蛍光板厚さと発光領域の大きさの関係

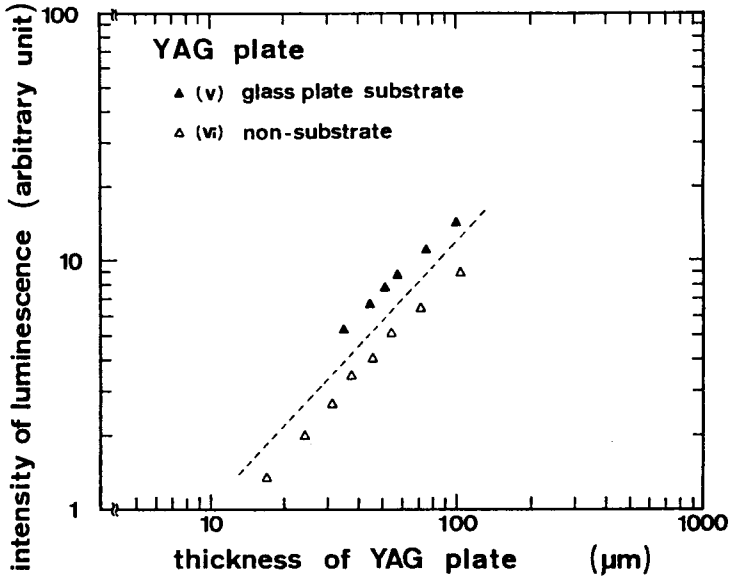


図５－７　ＹＡＧ単結晶の場合の蛍光板厚さと発光強度の関係

$$w = \sqrt{a^2 + b^2 + c^2} \qquad (5-1)$$

で表されると仮定する。

上式より算出したｃの値はおよそ４５μｍとなる。このことは、蛍光板をさらに薄くして発光領域を狭めようとしても、均質な蛍光板を使用する限り発光領域の抑制に限界があることを意味している。electron probe broadening モデル[40]によると、発光領域の半値幅は厚さの３/２乗に比例するが 測定結果はほぼ厚さに比例しており、必ずしも一致しない。また、上記モデルで計算した値より測定から求めた厚さに比例する項ｂの値の方が大きい。これらのことより発光領域の大きさは、単に電子と蛍光板材料の衝突拡散だけでは説明がつかない。

発光領域の異常広がりの原因は解明されていないが、次のような機構が寄与している可能性がある。①照射された電子が絶縁物の蛍光体中に捕獲、蓄積され、これが接地側に流れる際に蛍光体を励起し発光する。②発光した光子が蛍光体内部で、または表面で散乱する。③発生したＸ線により、蛍光体が励起し発光する。

５－４　蛍光板支持基板による後方散乱効果［32］

支持基板の影響を調べるため、図５-８ に示す２枚の蛍光板を用意した。（ａ）支持基板として厚さ３㎜のガラス板を用い、その上に粉末蛍光体をコロジオン溶液でおよそ６０μｍの厚さに均一に塗布したもの。電子ビーム入射側は約０．１μｍの厚さにアルミでメタルバックされている。（ｂ）粉末蛍光体をエポキシ樹脂で固めて薄膜にした支持基板のないもの。膜の厚さはおよそ７０μｍである。（ａ）と同様にアルミでメタルバックされている。

図５-９ にガラス支持基板を用いたもの（左）と用いない蛍光板（右）の外観写真を示す。支持基板のない蛍光板では中央の部分が蛍光板で、周囲の穴は真空排気のためである。

測定は前節の場合と同様に HU-2000型超高圧電子顕微鏡に取り付けた並列検出器を用い、蛍光板を順次取り替えて、発光領域の大きさと発光強度を測定する。入射ビーム径の半値幅も同じく３４μｍである。

（ａ），（ｂ）の蛍光板について、測定した発光強度分布を 図５-１０に示す。横軸は電子ビーム照射位置からの距離であり、電子ビームの位置を中心とした片

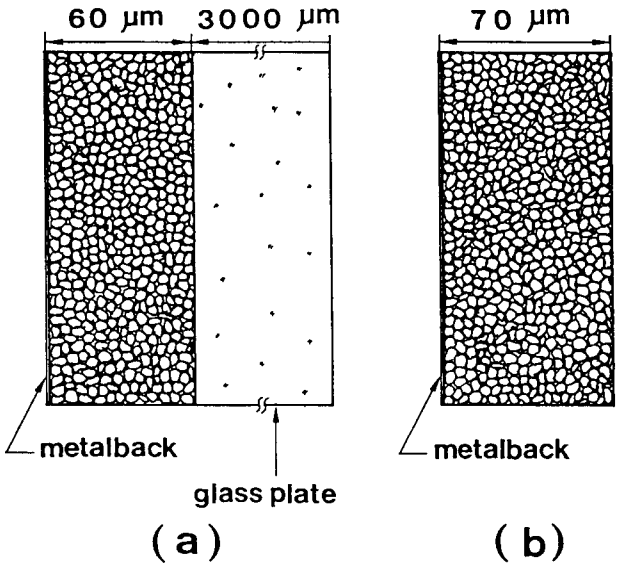


図５－８　　蛍光体支持構造の影響を測定するための蛍光板
（ａ）支持基板あり、　　（ｂ）支持基板なし

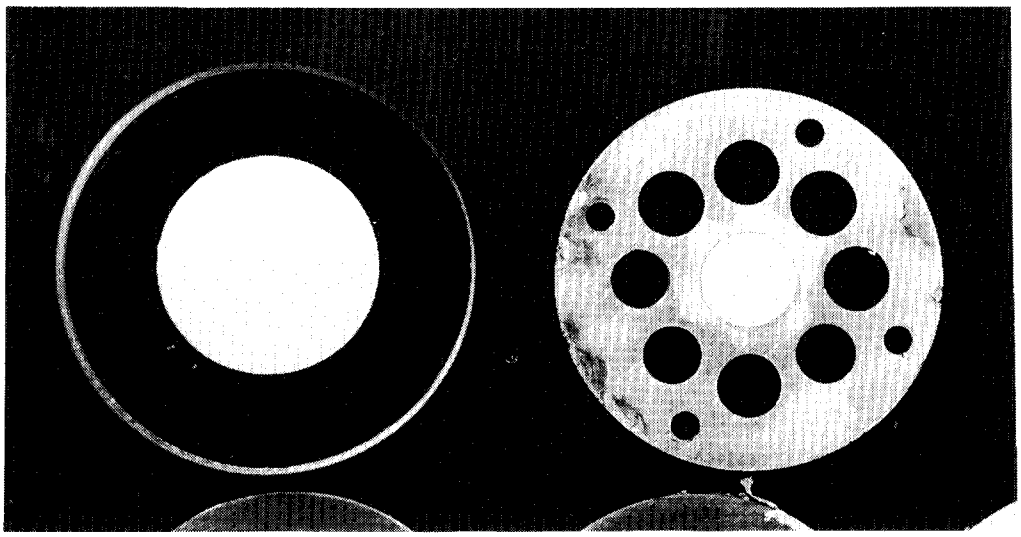


図５－９　ガラス支持基板を用いたものと用いない蛍光板の外観写真
（ａ）ガラス支持基板の中央部に蛍光体を塗布したもの
（ｂ）固化した蛍光体を保持板の中央部に固定したもの

側だけを表示してある。縦軸は発光強度で、対数表示してある。点線は直列方式によって実測した照射電子ビームの強度分布である。

２種類の蛍光板（ａ），（ｂ）における発光強度の半値幅はほぼ等しく、ガラス基板の有無にはほとんど影響されない。しかし、発光強度がピークの１／１０以下の領域は大きな差が認められる。バックグラウンドレベルは基板のあるほうがないものに比べて明らかに高い。例えば、ピークの高さの１％以上の範囲は基板のないものが直径およそ３４０μｍに対し、あるものは８５０μｍであった。これは例えば、分散が ５μｍ/eVの分光器を用いた場合、この値は ０-８５eV の測定範囲に相当する。これは支持用のガラス基板からの後方散乱電子によって、蛍光板の広い範囲から弱い発光が生じるためと考えられる。この実測値は、村田によって報告された後方散乱電子の計算結果[41] と傾向がよく一致した。ＥＥＬＳの観測において、この弱い発光は測定スペクトルのバックグラウンドを上昇させる。蛍光板によって変換された光を、並列検出器上に結像するためにファイバー結合方式を用いた場合にも、同様の影響があると推定できる。

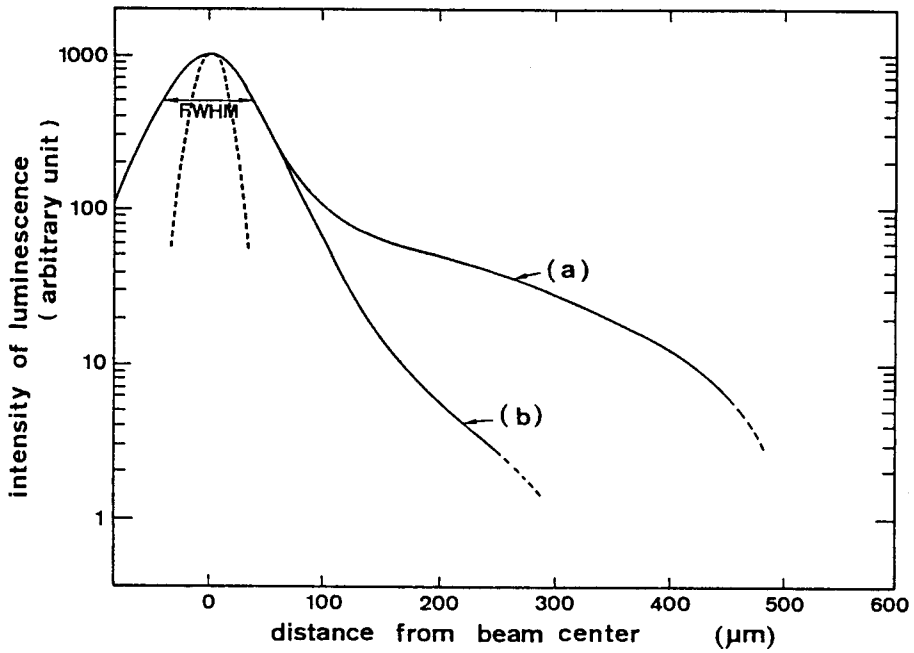


図５-１０　蛍光板支持構造と発光強度分布の関係

5－5　発光領域の広がり抑制蛍光板［32］

図5-11は、発光領域の広がり およびその抑制効果を調べるための5枚の蛍光板である。蛍光板（g）は新しく開発した発光領域の広がりを抑制する蛍光板で、"にじみ抑制蛍光板"と呼ぶことにする。これは発光領域の広がりの原因が、①入射電子によって蛍光板内に電流が流れること、②発光した光が蛍光板内で拡散すること、と考え、それを低減するために、導電性で不透明なシリコンで蛍光体を区切る構造としたものである。

蛍光板（c）～（f）はこれと比較するためのものである。（c）と（d）は前節の 図5-8に示した（b）と同じ製法で製作したもので、厚さはそれぞれ50μm、15μm。ただし、メタルバックはされていない。（e）と（f）はYAG単結晶板である。（e）は厚さ50μmに研磨した市販品である。さらに薄く均一に研磨するのが困難なため、（f）は楔形に研磨し、測定には厚さが16μmの領域を利用した。（e）のみメタルバックしてある。（g）はシリコン基板上に次の加工を施したものである。基板を厚さ20μmまで研磨し、幅12.5μm、深さ16μmの溝を20μm間隔で機械加工する。つまり7.5μm幅の壁で区切った構造を持つ。この溝壁によって光は各溝間で殆ど遮蔽される。この溝に粉末蛍光体を埋め込む。溝のない面を電子ビームの入射側に置き、溝と直角方向の発光領域の大きさを測定した。

比較用の蛍光板の内で50μmの厚さのものは、500keVの入射ビームに対して、均質な蛍光板では最も使いやすい厚さである。16μmの厚さを持つものは、"にじみ抑制蛍光板"と同じ厚さにして比較するためである。これらの蛍光板はいずれもガラスなどの支持基板を持たず、自立構造である。

図5-12は"にじみ抑制蛍光板"（g）の光学顕微鏡写真で、左は溝に蛍光体を埋め込む前、右は埋め込んだ状態を示す。

測定は前節の場合と同様に HU-2000型超高圧電子顕微鏡に取り付けた並列検出器を用い、蛍光板を順次取り替えて、発光領域の大きさと発光強度を測定する。入射ビーム径の半値幅も前節と同じく34μmである。

（c）～（g）の蛍光板について測定した結果を表5-2に示した。発光強度は（e）（YAG、厚さ50μm）の強度を1として規格化してある。

これより次のことがわかる。同じ厚さの場合、YAG蛍光板（e）（f）は粉

末蛍光体の蛍光板（ｃ）（ｄ）より発光領域の大きさは２５％程度狭い。しかし、ＹＡＧ蛍光板の発光強度は粉末蛍光体の蛍光板の約１／２～１／３である。また、にじみ抑制蛍光板（ｇ）は同じ厚さの粉末蛍光体（ｄ）と比較すると、発光領域の大きさはおよそ０．６倍に改善された。しかし、発光強度はおよそ０．８倍に低下した。また、５０μｍの厚さを持つＹＡＧ蛍光板（ｅ）と比較すると、発光領域の大きさはおよそ２／３であり、発光強度はおよそ１／２である。

この蛍光板において、入射電子ビーム強度の半値幅と発光領域の広がり幅を式（５-１）に従って分離してみると発光領域の広がり幅は１９μｍとなる。これはシリコンの壁による区切りの一周期（２０μｍ）と同程度である。

これより当初予想したように、蛍光板内で電流および光は区切りの壁によって遮蔽され、それより広がっていないと推定できる。

発光強度の低下は区切りによる蛍光体有効面積の低下によるものと推定される。これは溝を深くする事によって対応できると思われるが、幅が狭くしかも深い溝の加工には技術的な制約が伴う。

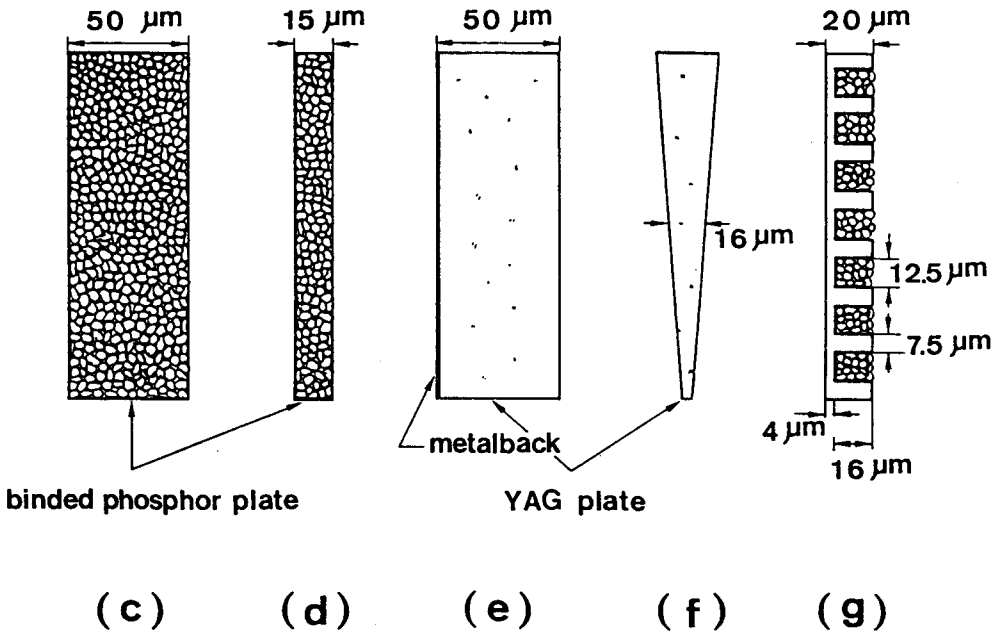


図５-１１　発光領域の広がりおよびその抑制効果測定用蛍光板

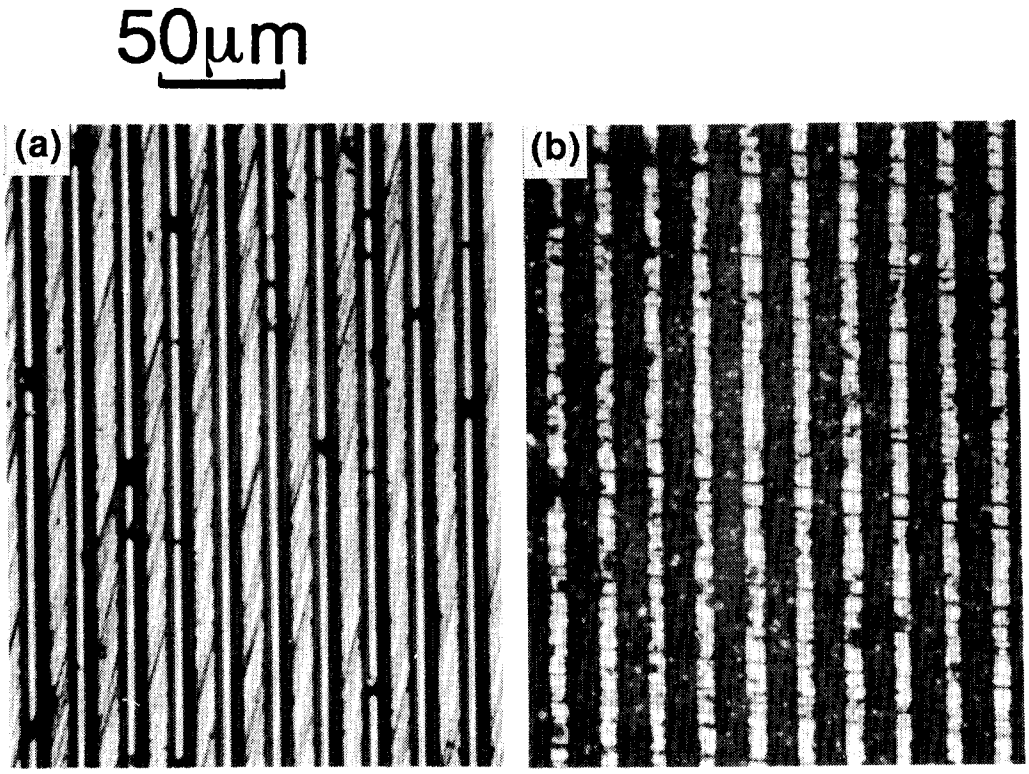


図５－１２　”にじみ抑制蛍光板”の光学顕微鏡写真
（ａ）溝に蛍光体を埋め込む前
（ｂ）埋め込んだ後

表５－２　図５－１１に示す蛍光板の発光領域の大きさと発光強度の実測値

蛍光板	厚さ（μｍ）	発光領域の半値幅（μｍ）	発光強度（（ｅ）を１とする）
（ｃ）	５０	７８	１．８５
（ｄ）	１５	６２	０．５９
（ｅ）	５０	５９	１
（ｆ）	１６	５２	０．１８
（ｇ）	１６	３９	０．４７

５－６　むすび

超高圧並列検出ＥＥＬＳ用の蛍光板に関して次の事が分かった。

① 蛍光板上での発光領域の広がりには、蛍光板の厚さに依存する項と依存しない項があり、後者の大きさはおよそ４５μmであった。

② 蛍光板の支持基板は後方散乱電子を発生させ、測定スペクトルのバックグラウンドレベルを上昇させる。 その影響は数１００μmにも及ぶため、支持基板を持つ構造の蛍光板は不適当であることが分かった。

③ 蛍光板での厚さに依存しない発光領域の広がりを抑制するには、シリコンの壁で蛍光体を区切った構造が有効であった。このとき広がり幅は溝の周期の約２０μm以内となった。

第６章　並列検出器におけるチャンネルミキシング効果　[18][33]

６－１　まえがき

本章では、検出系を評価するため、その検出量子効率（ＤＱＥ）をＳＮ比より求める。特に、並列検出器の内部でチャンネル間の信号が混合することにより、見かけ上、ＤＱＥが１を越すことがあり得ることを示す。

つぎに、信号記録系の構造と、並列検出法に必要な並列検出素子における素子間感度の補正処理と、ＥＥＬＳに一般に用いられる信号のバックグラウンド引き算処理について述べる。

６－２　チャンネルミキシング効果による検出量子効率の変化　[33]

検出器の性能は一般に検出量子効率（ＤＱＥ）で表される。これは次式で定義される。

$$DQE = (\text{出力側のSN比} / \text{入力側のSN比})^2 \qquad (6\text{-}1)$$

従って、理想的な検出器ではＤＱＥ＝１となり、一般の検出器ではＤＱＥは１より小さい。

ところが、実際の並列検出器では、見かけ上のＤＱＥが１を越すことが見つかった。これは、チャンネル間の信号が検出器の内部で混合される場合、ＤＱＥの測定値が見かけ上大きくなることによる。　並列検出器で起こり易いこの現象を”チャンネルミキシング効果”と名付け、このような場合の取扱い方を明らかにする。

並列検出系の蛍光板から光電面までの電子と光子の流れは、図６-１に示すようにモデル化される。この図の蛍光板と光学系に記された分割線はフォトダイオードアレイの１チャンネルに対応する実効チャンネル幅を示す。１個の入射電子に対する発光領域幅がこの実効チャンネル幅より大きい場合、蛍光板の電子入射面から光子出射面までの間でｐ個のチャンネル間で信号が混合されることになる。蛍光板の出射面から並列検出器までの領域では、信号は混合されないとする。

ここで、次のような仮定のもとでＳＮ比とＤＱＥを導出する。

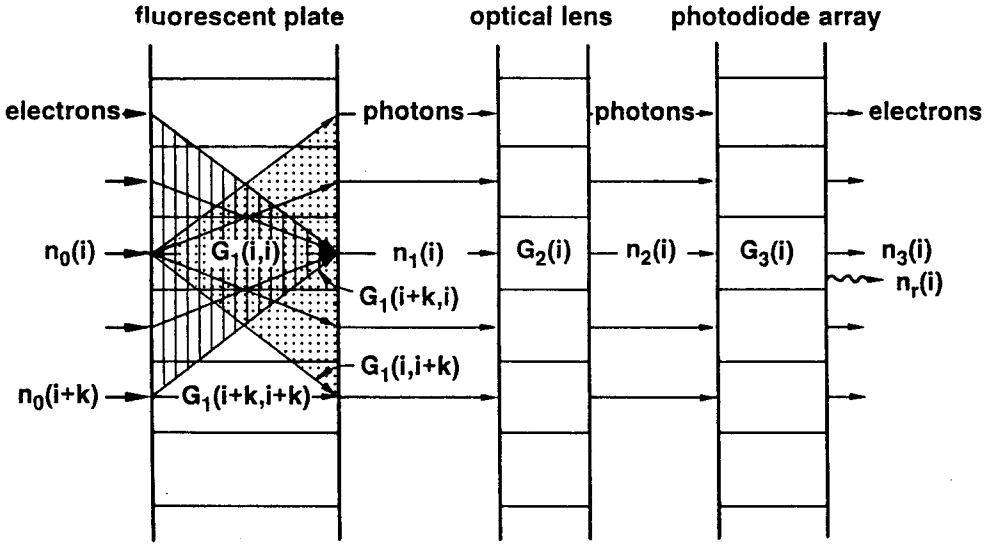


図６－１　並列検出系の蛍光板から光電面までの電子と光子の流れ

① 蛍光板のｉチャンネル領域に入射する一次電子数を$n_0(i)$とし、ポアソン分布に従う。信号が混合されるｐ個のチャンネルで同じ平均値n_0を持つ。

② 蛍光板のｉチャンネルに（１個の）電子が入射したとき、ｉ＋ｋチャンネルから出射する光子数を$G_1(i,i+k)$とおく。$G_1(i,i+k)$はポアソン分布に従う。信号が混合されるｐ個のチャンネルで同じ平均値G_1/pを持つ。

③ 光子がレンズ絞りを通過する確率を$G_2(i)$とおく。$G_2(i)$は二項分布に従い、平均値G_2を持つ。

④ 光電面での量子変換確率を$G_3(i)$とおく。$G_3(i)$はポアソン分布に従い、平均値G_3を持つ。

⑤ 検出器で発生する雑音に対応させて、n_r個の光電子を考える。

蛍光板上のｉチャンネルに$n_0(i)$個の電子が入射したとき、

i＋kチャンネルから出射する光子の数は $\sum_{n=1}^{n_0(i)} G_1(i, i+k)$ と

表わされる。したがって、iチャンネル近傍のp個のチャンネルに電子が入射することにより、蛍光板のiチャンネル領域から出る光子の数は

$$n_1(i) = \sum_{k=1}^{p} \sum_{n=1}^{n_0(i+k)} G_1(i+k, i) \qquad (6-2)$$

となる。このうち$n_2(i)$個の光子が光学レンズ系を通過して並列検出器のiチャンネル入射面に到達する。さらに、光電変換面で$n_3(i)$個の光電子が生じる。これらを式で書けば

$$n_2(i) = \sum_{n=1}^{n_1(i)} G_2(i), \quad n_3(i) = \sum_{n=1}^{n_2(i)} G_3(i) \qquad (6-3)$$

となる。

まず、$n_1(i)$について信号成分S_1と雑音成分N_1を求める。信号成分S_1は

$$S_1^2 = (n_0 G_1)^2 \qquad (6-4)$$

雑音成分N_1^2を$n_1(i)$の分散 $[\mathrm{var}\, n_1(i)]$ で表す。Burgessの分散定理を用いると式（6-2）はつぎのようになる。

$$\mathrm{var}\, n_1(i) = \sum_{k=1}^{p} [\overline{G_1(i+k, i)}^2 \mathrm{var}\, n_0(i+k) + \overline{n_0(i+k)} \mathrm{var}\, G_1(i+k, i)] \qquad (6-5)$$

式（6-5）に、

$\mathrm{var}\, n_0(i+k) = \overline{n_0(i+k)} = n_0$、$\mathrm{var}\, G_1(i+k, i) = \overline{G_1(i+k, i)} = G_1 / p$

の関係を代入する。

$$N_1^2 = \sum_{k=1}^{p} \overline{n_0(i+k)G_1(i+k,i)}\,[1+\overline{G_1(i+k,i)}]$$

$$= p n_0 (G_1/p)\,[1+G_1/p] \qquad (6-6)$$

つぎに、n_3についてその信号S_3と雑音N_3をそれぞれ計算する。式（6-3）に対して、式（6-4），（6-5）と同じ計算法を用いる。

$$S_3^2 = (n_0 G_1 G_2 G_3)^2 \qquad (6-7)$$

$$N_3^2 = n_0 G_1 G_2 G_3\,[1+G_3+G_1 G_2 G_3/p] \qquad (6-8)$$

ここで、$\mathrm{var}G_2(i)=G_2(1-G_2)$，$\mathrm{var}G_3(i)=G_3$ とした。

検出器の出力側での雑音（N_t）は、N_3による雑音以外に、光電面からの暗電流I_dのゆらぎ、および、信号読みだしなどスイッチング時に発生する 回路雑音（N_s）がある。 これらを光電面出力側に換算して表示する。

$$N_t^2 = N_3^2 + N_r^2、\quad N_r^2 = mN_s^2 + (I_d/e)\,\tau \qquad (6-9)$$

ここで、mは測定時間τ内での読みだし回数である。

この検出器のＤＱＥを考える。 いま、仮に入力側のＳＮ比として蛍光板の１チャンネル領域に入る電子数を基準にし、$(S_0/N_0)^2=n_0$ と置く。 このとき、見かけ上のＤＱＥをDQE^*で表すと

$$1/DQE^* = 1/p + 1/G_1G_2 + 1/G_1G_2G_3 + N_r^2/n_0(G_1G_2G_3)^2 \qquad (6-10)$$

仮に、式（6-10）で右辺第２、３、４項が小さい（ たとえば $G_1G_2G_3>>1$）とする。 このとき$DQE^*\sim p$となり、１より大きくなる。

ｐ個のチャンネルの信号が混合されることを考慮して、ｐ個のチャンネルに入

る電子数を入射側のＳＮ比の基準にする。 すなわち、$(S_0/N_0)^2 = p n_0$ とおく。 このとき、

$$1/DQE = 1 + p/G_1G_2 + p/G_1G_2G_3 + pN_r^2/n_0(G_1G_2G_3)^2 \quad (6-11)$$

ＤＱＥの値はG_1、G_2、G_3の値にかかわらず常に１より小さくなる。

ＤＱＥ*とＤＱＥの定義の違いは、 混合されるチャンネル数 ｐ の取扱い方による。

次に、ＳＮ比とＤＱＥの測定値について比較する。

検出器の特性は入射電流$I_0 = 5 \sim 7 \times 10^{-12}$Aの条件で測定した。 分光器の分散は５．６μm/eV、直列検出器ではスリット幅は２５μm、蛍光体の厚さはｄ＝５００μmである。 スペクトルは５mm掃引され、１０２４チャンネルに時分割される。したがって、１チャンネルの測定時間中に掃引によって移動する距離は５μmである。 直列検出器は常時５チャンネル幅の信号（電子）を取り込んでいることになる。直列検出器では１０２４チャンネルを単位測定時間τ（＝３秒）で測定し、これをm回積算する。 よって、１チャンネル当りの測定時間は$\tau_0 = m\tau/1024$となる。

一方、並列検出器ではｍ＝１である。並列検出系では蛍光板上のスペクトルは光学レンズで５倍に拡大され、 チャンネル間隔２５μmのダイオードアレイ上に結像される。 したがって、並列検出器１チャンネル当りの蛍光板上の幅は５μmである。 並列検出器用の蛍光体は厚さｄ＝３５μm、６０μm、１２５μmの３種類を用いた。 この蛍光板での発光領域の広がり幅 ｗ は５-３節の測定より近似的に $w \sim 0.75d$ で与えられ、２６μm、４５μm、９４μm となる。これらの蛍光板では、それぞれ５、９、１９のチャンネルの信号が混合される。

（ａ）測定時間とＳＮ比

ＥＥＬＳスペクトルの強度は損失エネルギーに依存する。以下に示す測定スペクトルの信号S_tおよび雑音N_tの大きさは、試料厚さ１００nmのカーボン蒸着膜のＫ吸収端での値である。

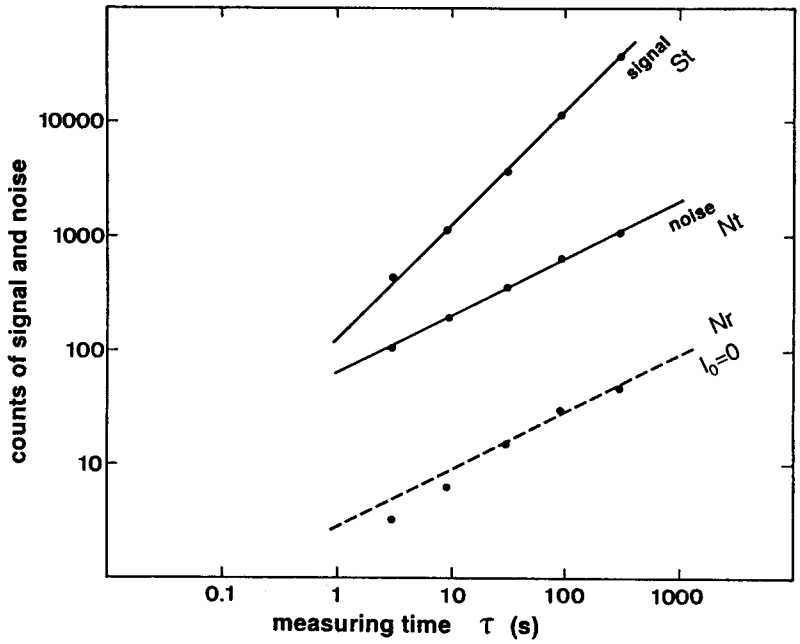


図６－２　直列検出器での信号S_tおよび雑音N_tの全チャンネル測定時間τ依存性

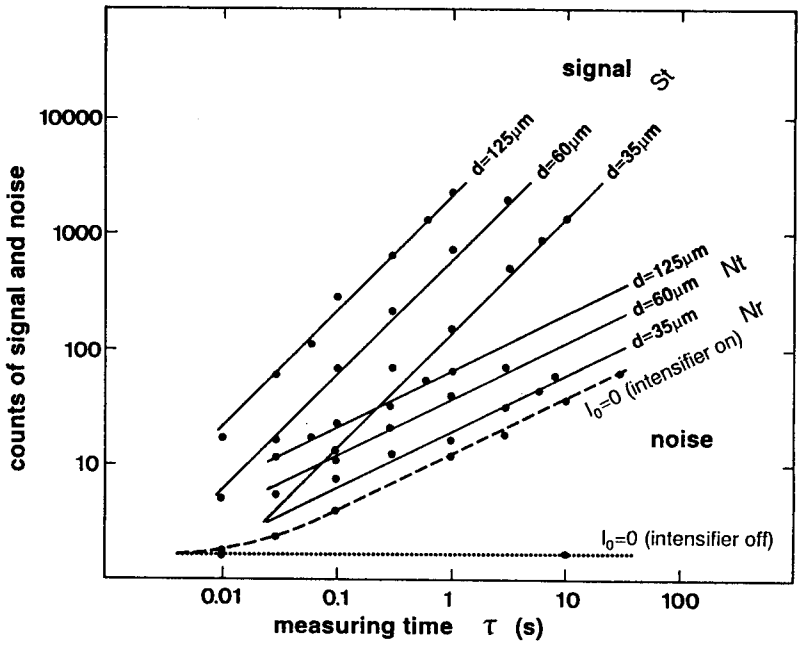


図６－３　並列検出器での信号S_tおよび雑音N_tの測定時間τ依存性

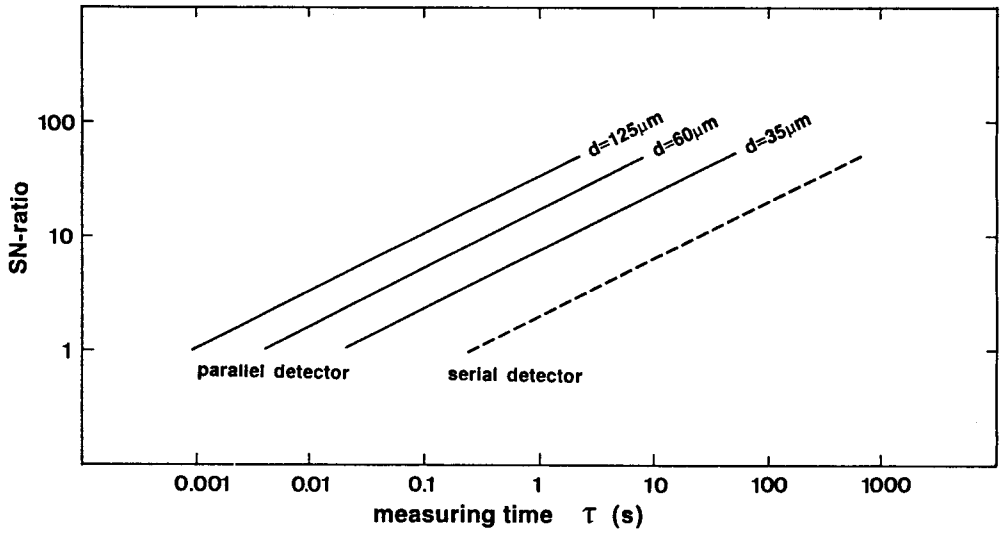


図６－４　ＳＮ比と測定時間τの関係

図６－２ は直列検出器での全チャンネル測定時間τと信号および雑音の関係である。ただし、縦軸は検出電圧のＡＤ変換値である。 信号S_tは測定時間τに比例し、雑音N_t は$\sqrt{\tau}$に比例している。ビーム電流が無いとき、検出系のみの雑音N_rの大きさを破線で示す。雑音N_tは入射電子のショット雑音とほぼ等しく、検出系の持つ雑音N_rの約１７倍である。

図６－３は並列検出器での測定時間τと信号S_t および雑音N_tの関係である。ただし、縦軸は検出信号のＡＤ変換値である。上記の３種類の厚さの蛍光板について示されている。破線はビーム電流が無いときの検出系のみの雑音N_rである。$\tau > 0.1$ secでは雑音N_rは$\sqrt{\tau}$に比例する。これは主として暗電流I_dのゆらぎによる。点線はビーム電流がないときに、検出器の光電子増倍部の電源を切った状態での雑音である。 $\tau \sim 0.01$ ｓでは、測定時間に依存しない回路のスイッチングに伴う雑音が大きい。図６－２の直列検出器と図６－３の並列検出器を比較すると、並列検出器での雑音レベルは検出器固有の雑音に近い。これはフォトダイオードの暗電流が光電子増倍管に比べて大きいことと、蛍光板を薄くしたこと

により蛍光板での電子－光変換効率が低下したことが影響している。

図６-４は図６-２と図６-３より １０２４チャンネルを測定するのに要する時間τとＳＮ比の関係を書き直したものである。 １２５μmの厚さの蛍光板を持つ並列検出器は直列検出器に対して、およそ１／３００の測定時間である。単純に考えると同じＳＮ比の条件では、１０２４チャンネルを持つ並列検出器の測定時間は、５チャンネルのスリット幅をもつ直列検出器の測定時間の１／２００となるように思える。しかし、蛍光板上で信号が混合される場合、見かけ上ＳＮ比がよくなり測定時間がさらに短縮される。ただし分解能は低下している。

（ｂ） 直列検出器のＤＱＥ

式（６-１）を書き直すと、

$$(S_t/N_t)^2 = DQE\,(S_0/N_0)^2 \qquad (6-12)$$

となる。ここで、検出器入力側でのＳＮ比（S_0/N_0）を入射ビームの持つ信号とショット雑音の比で表す。

$$(S_0/N_0) = \sqrt{n_0} = \sqrt{(I_0/e)\,\xi^*\tau} \qquad (6-13)$$

ここで、ξ^*は検出器入射電流I_0に含まれる電子数と測定対象エネルギー領域でスリットを通過する電子数の比である。 ここで、プローブ電流の測定値I_0＝７ｐＡ、 全チャンネルとＫ吸収端近傍の５チャンネルの測定カウント数の比より、ξ^*＝7×10^{-5} となる。 測定時間としてτ＝９０ｓの条件で計算を進める。この時、（S_0/N_0）＝１７となる。検出器出力側でのＳＮ比は実測されており、図６-４より（S_t/N_t）～１９である。 このことは直列検出器の場合ＤＱＥは１に近い値であることがわかる。 これらの値を式（６-１２）に代入するとＤＱＥの値は１を越えるがこれは ξ^*の値がそれほど測定精度がないためである。

ＤＱＥの値は個々のエレメントの特性より算出することもできる。 式（６－１１）でｐ＝１とする。暗電流など直列検出器固有の雑音成分は測定値より小さいことがわかっているので、第４項を無視する。蛍光板での電子より光子への変

換効率G_1は

$$G_1 = \eta\ (E_e / E_p) \sim\ 1 \times 10^4 \qquad (6-14)$$

ここで、蛍光板のエネルギー変換効率η、一次電子のエネルギーE_e、および、光子のエネルギーE_pをそれぞれ～0.06、5×10^5eV、および、3eVと置いた。さらに、蛍光板から光電子増倍管光電面までの伝送効率G_2を～0.02、光電面の光子－電子変換の量子効率G_3を～0.25とする。このとき、$G_1G_2G_3$は～50となる。これらの値を式（6-11）に代入するとDQE＝0.97となり、1にかなり近い値となる。計算に用いた値および測定値を表6-1にまとめて示す。

（c）並列検出器のDQE

並列検出器で測定した検出器出力側のSN比（S_i / N_i）は図6-4より、厚さd＝35μm、60μm、125μmの3種類の蛍光板に対して、それぞれ7.5、17、35である。

次に検出器入力側のSN比（S_0 / N_0）を考える。まず、チャンネル間で生ずる信号の混合を無視して、実効チャンネル幅に入射する電子流の持つSN比を式（6-13）で定義する。このとき$\xi = 1.4 \times 10^{-5}$、τ＝1sである。　式（6-12）を用いて求めたDQEをDQE*で表すとDQE*は、厚さ d＝35μm、60μm、125μm の3種類の蛍光板に対して、それぞれ0.10、0.60、2.3となり、d＝125μm のときDQE*は1より大きくなり、通常の意味でのDQEが1を越えないとする定義に反する。

そこで、蛍光板上でpチャンネル間の混合を考慮して、入力側のSN比を次のように書き表す。

$$(S_0 / N_0) = \sqrt{p n_0} = \sqrt{p\,(I_0 / e)\,\xi\,\tau} \qquad (6-15)$$

ここで、ξは検出器入射電流I_0に含まれる電子数と測定対象エネルギー領域の1チャンネルに入射する電子数の比である。厚さd＝35μm、60μm、125

表６－１　直列・並列検出器の検出器パラメーター、ＳＮ比およびＤＱＥの計算値と実測値

	serial detector	parallel detector		
analyzed beam parameters				
I_0 (pA)	7	5		
ξ or ξ^*	7×10^{-5}	1.4×10^{-5}		
τ (s)	90	1		
n_0	280	440		
detector parameters				
d (μm)	500	35	60	125
p	1	5	9	19
G_1	10^4	100	430	1600
G_2	0.02	5×10^{-3}	5×10^{-3}	5×10^{-3}
G_3	0.25	0.5	0.5	0.5
$G_1G_2G_3$	50	0.25	1.1	4
signal and noise				
S_3	1.4×10^4	110	480	1800
N_3	850	13	28	55
N_r	38	10	10	10
SN ratio				
S_0/N_0	17	47	63	91
S_t/N_t	16.5	6.7	16	32
measured values	19	7.5	17	35
DQE				
DQE*	0.97	0.10	0.60	2.3
DQE	0.97	0.020	0.066	0.12
measured values	～1	0.025	0.073	0.15

μmの３種類の蛍光板に対して、pは ５、９、１９ であるから 入力側のＳＮ比（S_0/N_0）はそれぞれ４７、６３、９１となる。 ただし、$\xi = 1.4 \times 10^{-5}$、τ ＝１sとした。 一方、出力側のＳＮ比は図６-４より、それぞれ７．５、１７、３５となる。式（６-１５）を式（６-１２）に代入してＤＱＥを求めると、ＤＱＥは０．０２５、０．０７３、０．１５となり、ＤＱＥ＜１が成り立つ。

直列検出器の場合と同様に検出器の個々のエレメントの変換量子効率を用いても計算できる。出力側のＳＮ比は式（６-９）で、ＤＱＥは式（６-１１）で表される。並列検出器のパラメータを表６-１のようにあたえる。 ３種類の蛍光板に対して、計算したＳＮ比は６．７、１６、３２となり測定結果とほぼ一致する。ＤＱＥの値に対しても表６-１に示すようにほぼ一致する。

この系の測定時間とＳＮ比の関係は、蛍光板でのチャンネル間の信号の混合を考える事により説明できる。

６－３　並列検出法の信号記録系と信号処理 ［18］

６－３－１　信号記録系

図６-５に信号記録系のブロック図を示す。 用いたマルチチャンネルアナライザーは Tracor Northern 社製の TN-1710 である。直列検出器および並列検出器からの信号は、それぞれのインターフェースを通して、マルチチャンネルアナライザーに入力され表示される。データはディスク装置に書き込み、読み出しができ、他の装置への転送も可能である。直列方式の場合、マルチチャンネルアナライザーから任意の周期の掃引信号を発生させ、その信号を偏向コイルに加え、スリットに対するスペクトルを走査させる。また、並列検出の場合は、マルチチャンネルアナライザーによってフォトダイオードアレイ検出器の種々の制御を行なっている。並列検出器の一回の読みだしに対するダイナミックレンジは４０９６である。 読みだし周期は前述のように２０msから２３００hまで広範囲に可変することができる。

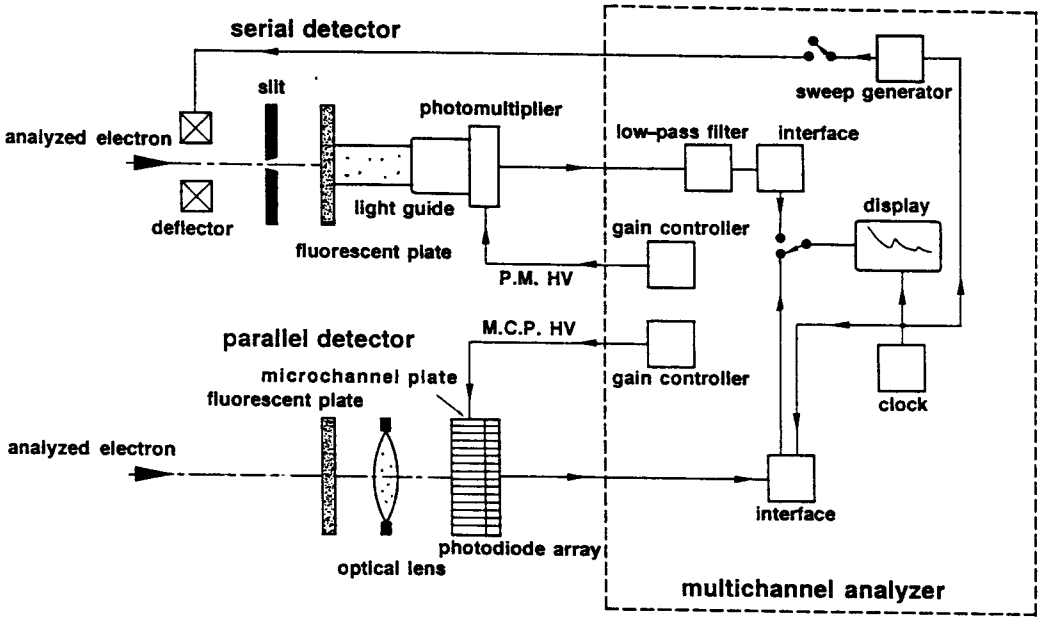


図６-５　信号記録系のブロック図

６－３－２　並列検出ＥＥＬＳに必要な信号処理

直列検出方式では無かった現象として、並列検出方式では各チャンネル間の感度のばらつきがある。このチャンネル間のばらつき補正を行う（処理(１)）。それに加えて一般にＥＥＬＳで行われている信号処理も行なう（処理(２～４)）。

処理（１）　チャンネル間の感度のばらつきの補正処理

前述したように、フォトダイオードアレイは４つの異なる読みだし回路を持つアレイを交互に組み合わせた構造になっている。これらは特性が僅かに異なるため、測定したスペクトルは４チャンネル毎に周期的に変化する傾向がある。個々の検出素子の感度のばらつきは並列検出器特有の問題点であり、素子間の感度補正の必要がある。 図６-６は隣接する４つの検出回路のばらつきを見るため、入射光強度と検出器出力の関係を測定した一例である。８００から８０４チャンネルの５つの素子について、各チャンネルに同一強度の光が入力され

ている条件の下でその出力を測定した。このデータを基に、横軸に８００チャンネルの出力を、縦軸に他のチャンネルの出力をプロットした。図から分かるように、８００と８０４チャンネルには感度の値は異なるが比例関係がある。他のチャンネルとは感度の値は異なり、比例関係も成立しない。従ってチャンネル間のばらつきは単純な定数で補正することは困難である。ここではこの補正のために次のような二つの手法を用いた。

手法①　入射光強度を変化させ、全チャンネルの検出感度をその検出器出力の関数として予め測定し、この関数を用いて測定スペクトルの検出感度を補正する方法。

全チャンネルに均一強度の電子ビーム（光）を照射し、各チャンネルの出力値と標準値（全チャンネルの平均値）からのずれをその出力値の関数として予め求めておく。入力レベルを１０段階程度変えて測定し、パソコンに補正用データ（補正係数）を集積する。測定したスペクトルの各チャンネルの出力値に対して、その出力値に応じた補正係数を掛ける。この方法は、ダイオードアレイの特性のばらつきのみならず、蛍光板、光電子増倍管の場所的な感度むらも補正できる。

手法②　測定したスペクトルをもとに周期的感度変化を補正する方法。

隣接する４つのチャンネルのカウント数を CH_h, CH_i, CH_j, CH_k とする。これらは、異なる読みだし回路 h, i, j, k より読み出される。これらの回路間にある読みだし利得の差を求める。各組の隣接する５チャンネル分の信号を取り出し、その平均値を求める。ただし、ｈとｉなどでは１チャンネルの差があるので、両端の読みだし値には次式のような重みを付加する。

$$\overline{CH}_h = (CH_{h-2}/4 + CH_{h-1} + CH_h + CH_{h+1} + CH_{h+2} + 3CH_{h+3}/4)/5$$
$$\overline{CH}_i = (CH_{i-2}/2 + CH_{i-1} + CH_i + CH_{i+1} + CH_{i+2} + CH_{h+3}/2)/5$$
$$\overline{CH}_j = (3CH_{j-2}/4 + CH_{j-1} + CH_j + CH_{j+1} + CH_{j+2} + CH_{h+3}/4)/5$$
$$\overline{CH}_k = (CH_{k-2} + CH_{k-1} + CH_k + CH_{k+1} + CH_{k+2})/5$$

（6-16）

この平均値より今検出しているレベルでの４つの読みだし回路の利得の差を求めて、元の信号のレベルを補正する。ここでは、読みだし回路ｋをその基準に置いた。この補正後のカウント数は

$$CH_h^* = CH_h \times (\overline{CH_k} / \overline{CH_h})$$
$$CH_i^* = CH_i \times (\overline{CH_k} / \overline{CH_i})$$
$$CH_j^* = CH_j \times (\overline{CH_k} / \overline{CH_j})$$
$$CH_k^* = CH_k \times (\overline{CH_k} / \overline{CH_k})$$

（６－１７）

この操作をチャンネルをずらせて順次全チャンネルに対して行なう。

この方法に於ける平均は各読み出し回路の平均的な検出利得を求めるための操作であり、雑音を含む元の信号と再び掛け合わせるので平滑化の効果が小さい。

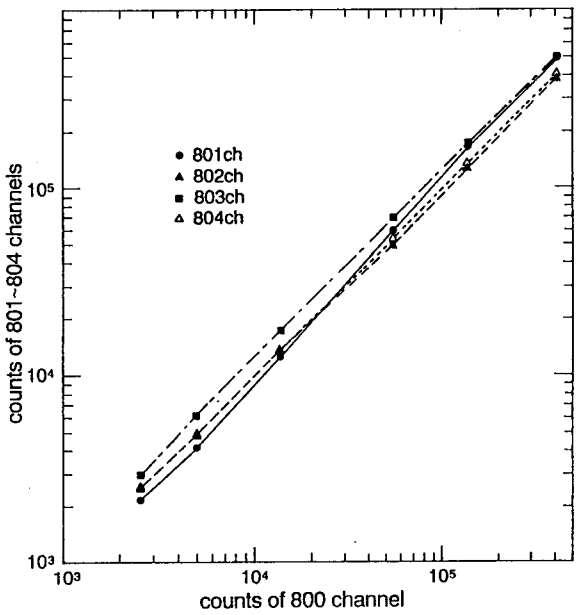


図６－６　隣接する４素子の入出力特性の差

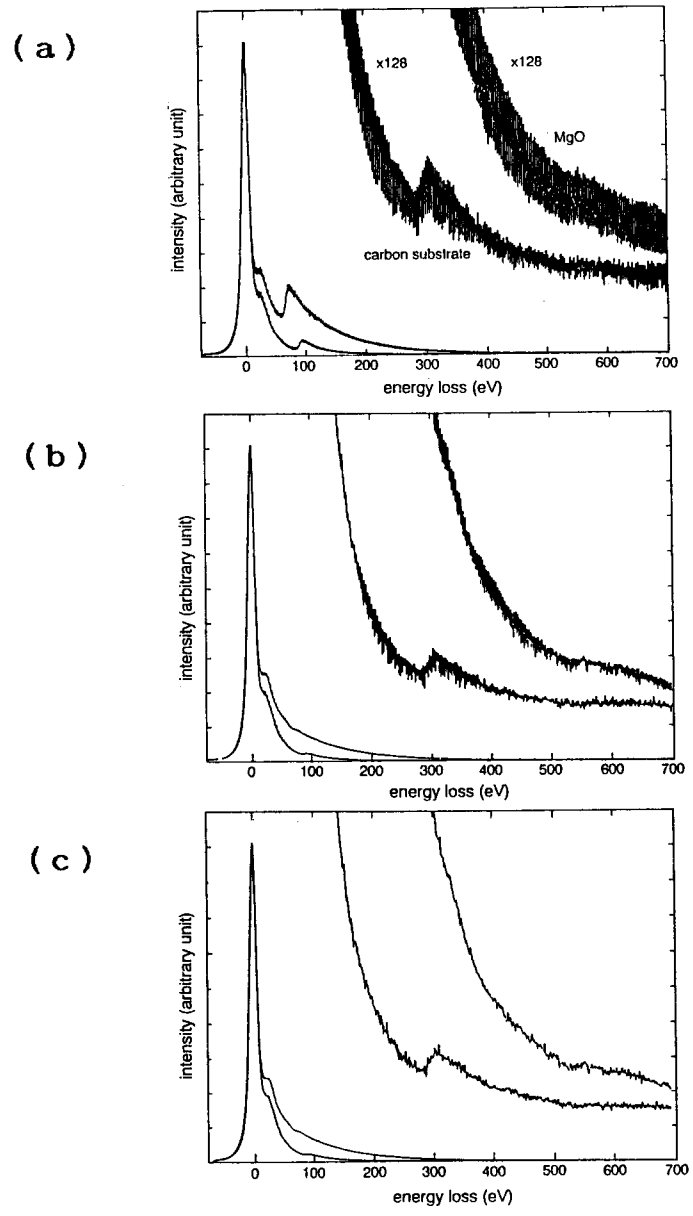


図６－７　チャンネル間のばらつき補正例

（ａ）　補正前

（ｂ）　手法①を用いた場合

（ｃ）　手法①と手法②を両方用いた場合

この二つの手法を用いてチャンネル間のばらつきを補正した例が　図６-７（ａ），（ｂ），（ｃ）である。ばらつきが極端に大きい状態で、ＭｇＯのスペクトルについて補正前と補正後について示した。（ａ）は補正前、（ｂ）は手法①を用いた場合、（ｃ）は手法①に加えてさらに手法②を用いた場合である。チャンネル間の感度のばらつきはほとんど補正でき、残留する雑音は電子ビームのショット雑音とほぼ同程度となる。（ｃ）の６００チャンネル近傍のＳＮ比は約４０であり、電子ビームのショット雑音によるＳＮ比４９とほぼ等しい。

手法①のみで完全に補正できていないのは、用いた補正用データが１０段階であるため、全入力レベルに完全に対応できていないためと考える。

処理（２）　隣接チャンネルどうしの平均化による平滑化処理

各チャンネルの測定データをCH_1，CH_2，CH_3・・・・・とする。ここで、

$CH_n = CH_{n-1}/4 + CH_n/2 + CH_{n+1}/4$　として隣接のチャンネルのデータと平均することにより、スペクトルのスムージングが行える。ただしエネルギー分解能は低下する。

処理（３）　測定スペクトルの縦軸、横軸の任意倍率の変更処理

処理（４）　スペクトルのバックグラウンドの引算処理

ＥＥＬＳの測定スペクトルはゼロ損失ピークから指数関数的に減少するバックグラウンドに元素や結晶構造に起因する吸収端が重なって現われる。従ってこのバックグラウンドを取り除くほうが種々の吸収端が分かりやすくなる場合がある。図６-８に一般によく行なわれている方法を示す[16]。バックグラウンドの曲線KE^{-j}を求めるために、適当なエネルギーE_1、E_2、E_3を決めると積分値 H_1、H_2 が決まる。これらの値から

$$j = 2\log(H_1/H_2)/\log(E_2/E_1)$$
$$K = (1-j)H_2/(E_2^{1-j} - E_1^{1-j}) \qquad (6-18)$$

が決まる。測定スペクトルからKE^{-j}を引くとバックグラウンドが除かれてピ

ークのみが得られる。 図６-９はカーボン支持膜試料について、この処理を行なった例である。実測したスペクトルに対して、上式によって求めたバックグラウンドの曲線を点線で示す。また、実測スペクトルからバックグラウンドを引いたものも示す。ただし、引き算されたスペクトルのゼロレベルは表示の都合上変えてある。カーボンの吸収端が見やすくなっている。

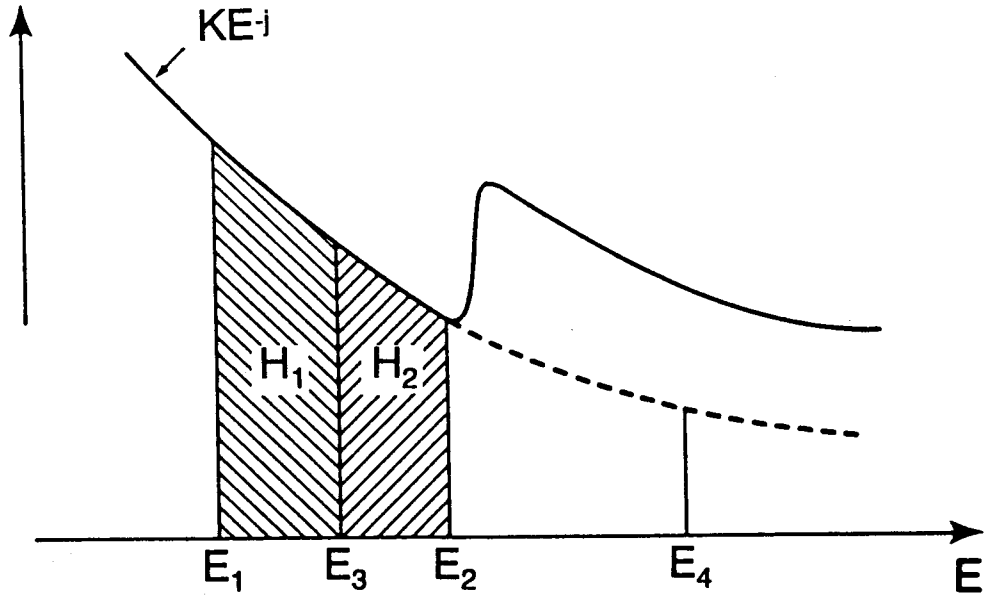


図６-８　バックグラウンドの引算方法

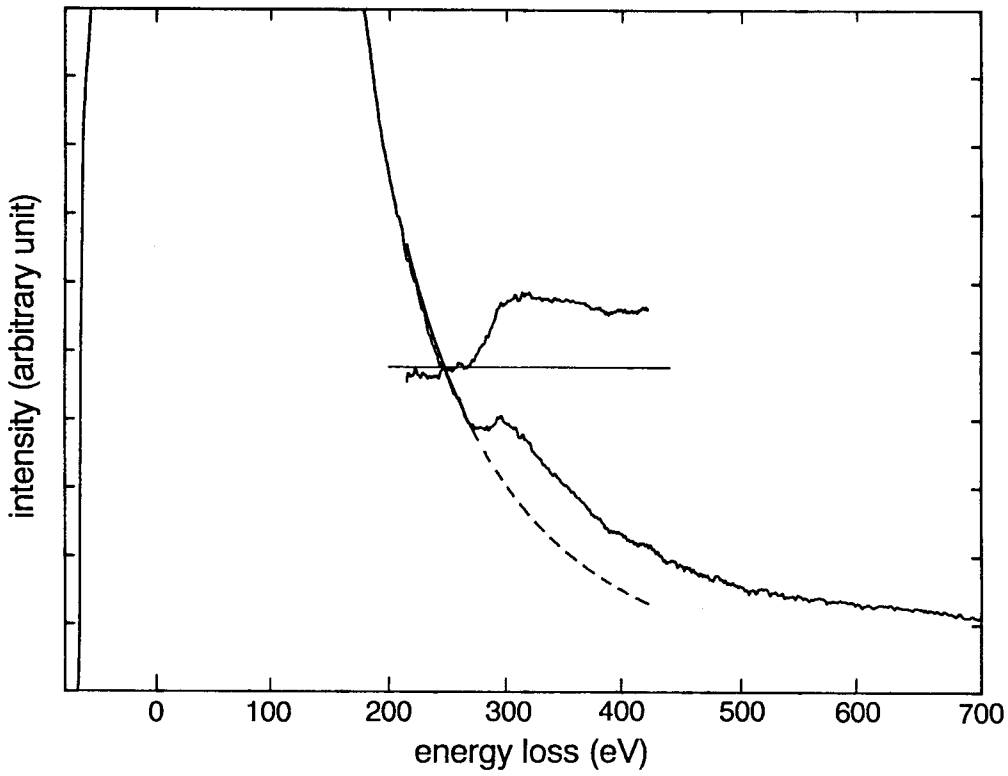


図６－９　バックグラウンドの引算処理例

６－４　むすび

①並列検出器の内部でチャンネル間の信号が混合される場合、検出器の性能を示す検出量子効率（ＤＱＥ）は、”チャンネルミキシング効果”により見かけ上よくなる。

②並列検出器固有の各チャンネル間の感度のばらつきを補正する手段を講じた結果、チャンネル間の感度のばらつきはほぼショット雑音の大きさに抑える事ができた。

第７章　試作超高圧並列検出ＥＥＬＳ装置の特性測定と応用

[18][21][28][29][33]

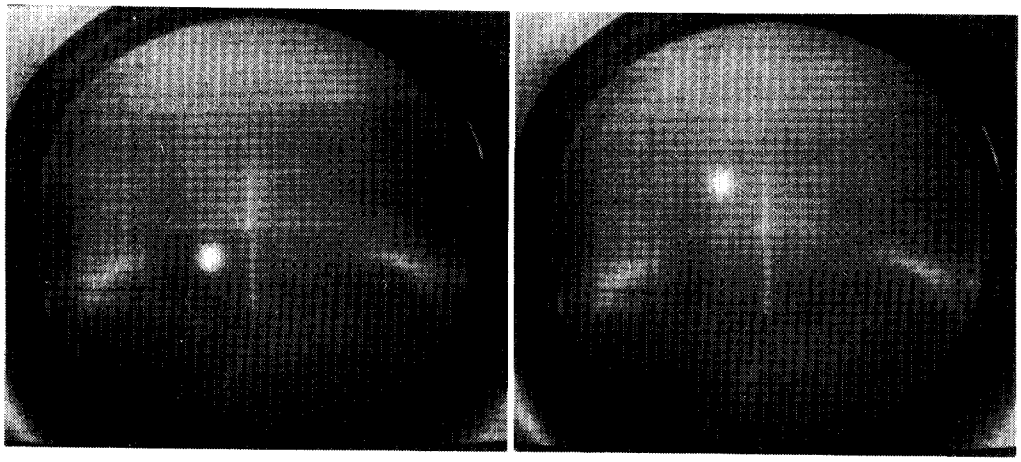
７－１　まえがき

本章では、まず、分光器の分散について測定し、第２章での設計結果と比較する。つぎに、この装置の電子光学的なエネルギー分解能を直列検出法で測定する。つぎに、並列検出法でのエネルギー分解能を実測して、並列検出系に起因する分解能低下の影響を測定する。さらに、並列検出法の最も有利な点である測定時間の大幅短縮を示すため、ＥＥＬＳ測定時の性能を直列検出法と比較する。すなわち、ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳ条件での、空間分解能、エネルギー分解能と測定時間の関係を一枚の図に表し、これを評価する。最後に本装置を用いて測定した２、３の例を示す。

７－２　分光器の分散 [18][28]

分散の測定は、電顕の加速電圧を変化させ、そのときのスペクトル測定面におけるビームの移動量より求める。加速電圧の変化は加速電圧の高圧発生回路よりのサンプリング電流をデジタルボルトメーターで読みとる。ビームの移動量は検出器の代わりに、図７-１に示すようにＴＶカメラで観測した。四極子１個を用いた場合の分散値を表７-１に示す。測定値は５．５μm/eVで、設計値との差は２％程度である。四極子を励磁しない場合、二方向収束条件は満たされないが、このときの分散も８％程度の誤差でほぼ一致している。

図７-２は四極子を２個用いて可変分散としたときの分散の実測値である。二方向収束条件を満たす条件での、前段四極子励磁強度（K_{Q1}）の関数として示されている。実線は第２章で求めた計算値であり、破線は測定値である。両者はよく一致している。　ただし、二方向収束するための前段と後段の四極子励磁強度（K_{Q1}とK_{Q2}）の関係は第２章の図２-１２に示されている。



500kV　　499.148kV

図７-１　ＴＶカメラを用いた分散の測定

表７-１　四極子１個の場合の分散の測定値と計算値の比較

	計算値	実測値
四極子励磁　ＯＮ	５．６１　ｍｍ／ｋｅＶ	５．５１　ｍｍ／ｋｅＶ
四極子励磁　ＯＦＦ	１．２５　ｍｍ／ｋｅＶ	１．３５　ｍｍ／ｋｅＶ

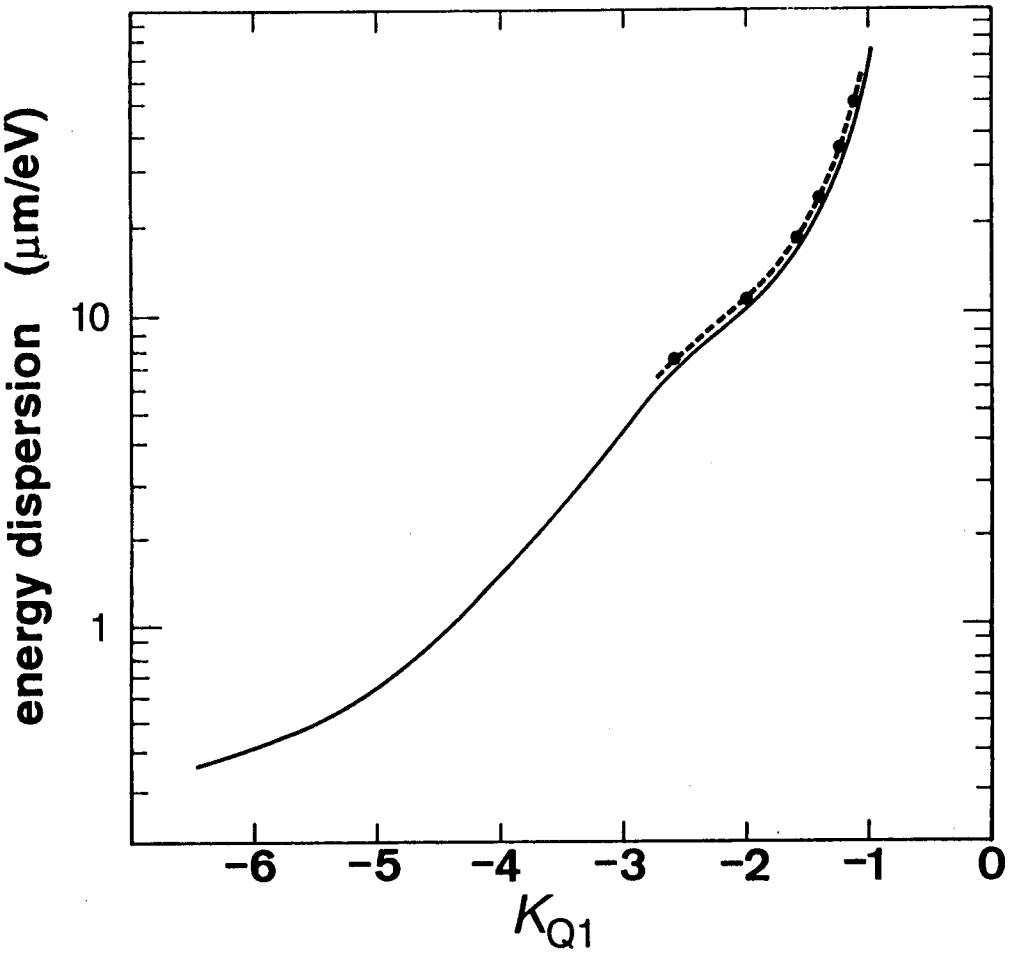


図７-２　四極子を２個用いた場合の可変分散特性の測定値と計算値の比較

７－３　エネルギー分解能 [18][29]

図７-３（ａ）は分光器の分散が５．６μm/eVの場合に直列検出法で測定したゼロ損失ピークである。測定条件は、ビーム電流 I_0＝５～７pA、スリット幅約５

μm、全チャンネル（１０２４ｃｈ）の測定時間 ０．２ｓ、蛍光体の厚さｄ＝５００μmである。 ゼロ損失ピークの半値幅はおよそ３チャンネルに対応し、およそ３eVであった。これはスリット幅を小さくしても変わらなかった。これより、電顕を含めた分光器の電子光学系は約３eVのエネルギー分解能を持つと考える。

検出器を並列検出器に取り替えて測定したものが図７-３（ｂ）である。 ゼロ損失ピークの半値幅は約１０チャンネル、約１０eVであった。エネルギー分解能の低下は第５章で述べた蛍光板の発光領域の広がり効果による。図５-４、５-６より分かるように、発光領域の広がり幅はおよそ５０～６０μmあり、分散が５．６μm/eVのときこの広がりは約１０eVに相当する。

図７-３（ｃ）は二つの四極子を用い、分散が５０μm/eV のときのゼロ損失ピークである。 半値幅は３４チャンネルであり、エネルギー分解能は３．８eVに相当する。分散値を大きくすることにより、相対的に発光領域の広がりの影響が緩和されている。

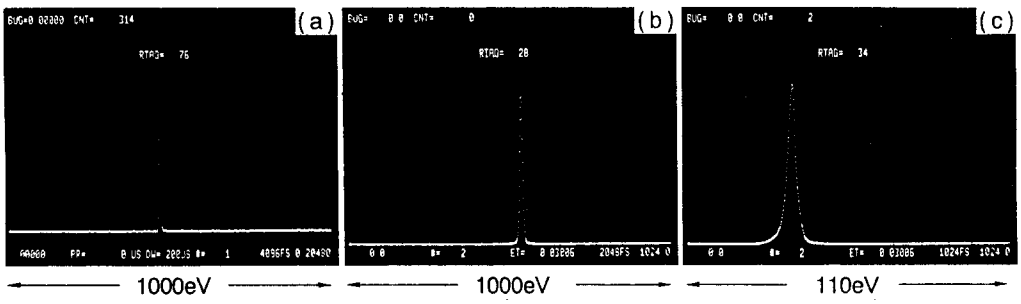


図７-３（ａ） 分光器分散が ５．６μm/eVの場合に直列方式で測定したゼロ損失ピーク

（ｂ） 分光器分散が ５．６μm/eVの場合に並列方式で測定したゼロ損失ピーク

（ｃ） 分光器分散が ５０ μm/eVの場合に並列方式で測定したゼロ損失ピーク

7－4　空間分解能、エネルギー分解能と測定時間　[18][21][28][29][33]

ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳ装置の性能評価は、空間分解能、エネルギー分解能、測定時間の三つの項で決まる。これらは互いに独立ではなく、以下に示す関係がある。

（i）試料電流と測定時間

試料に照射される電流値I_sは、ビーム輝度β、ビーム半径r_2およびビーム開き半角α_2を決めれば次の関係より決まる。

$$I_s = \beta \pi^2 \alpha_2^2 r_2^2 \qquad (7-1)$$

試料からのビーム電流は、試料およびレンズ系の電流透過率をT_sと置くと

$$I_0 = I_s T_s \qquad (7-2)$$

で与えられる。ここで、照射レンズ系の収差は無視した。

検出器の検出量子効率ＤＱＥを与えた場合、ｋ番目のチャンネルで検出した信号のＳＮ比（S_k/N_k）は、検出ビーム電流$\xi_k I_0$および観測時間τと次の関係がある。

$$(S_k/N_k)^2 = \tau \, DQE^* (I_0/e) \xi_k \qquad (7-3)$$

ここで、ξ_kはｋ番目のチャンネルに入射する電流I_kと全電流I_0の比である。

（ii）エネルギー分解能

試料からのビームが分光器入射面に到達したとき、ビーム半径r_4、開き半角α_4、は次のようになる。

$$r_4^2 = (M r_2)^2 + (C_s^*{}_{int} \alpha_4^3 / 4)^2 \qquad (7-4)$$

$$\alpha_4 = \alpha_2 / M \qquad (7-5)$$

ここで、Mは試料面と分光器入射面間の倍率、$C_s^*{}_{int}$はこの間のレンズ球面収差の像側換算値である。この系ではビーム径に対する収差の影響は中間レンズの球面収差が最も大きい。

式（7-4），（7-5）で表される分光器入射ビームに対して、著者が設計した分光器のエネルギー分解能 ΔE_Bは第2章の式（2-6）で示した[28]。

$$\Delta E_B^2 = 2.6 r_4^2 + 39 \alpha_4^4 \qquad (7-6)$$

ここで、ΔE_B は eV、r_4 は μm、α_4 は mrad で表したときの値である。式（7-6）右辺第2項は2次の幾何収差項である。

並列検出ＥＥＬＳの場合、エネルギー分解能は第4章で述べた入射ビームのエネルギー変動成分 ΔE_a、および第5章で述べた蛍光板での発光領域の広がり成分の分解能換算値ΔE_fにも関係する。並列検出器でこれらの項を総合したエネルギー分解能ΔE_Tは経験的に次式で表される[29]。

$$\Delta E_T^2 = \Delta E_B^2 + \Delta E_a^2 + \Delta E_f^2 \qquad (7-7)$$

ここで　$\Delta E_f^2 = \{w_0^2 + (kd)^2\} / D^2$　であり

w_0は蛍光板が十分薄いときの発光領域の広がり、

d　は蛍光板の厚さ、

D　は分光器の分散、

k　は比例定数　　である。

式（7-7）に式（7-4）、（7-5）、（7-6）を代入すると ΔE_Tはr_2, α_2, M, d, Dの関数となる。ここでα_2, M, D を固定して考える。このとき、エネルギー分解能は試料への入射ビーム径と蛍光板の厚さの関数　ΔE_T（r_2, d）として表示できる。また、式（7-1）、（7-2）を用いて、r_2を電

流I_0で置き換え、さらに、式（7-3）を用いて観測時間τに置き換えると、エネルギー分解能は観測時間と蛍光板の厚さの関数$\Delta E_T(\tau, d)$と表示できる。

検出されたスペクトル信号に許容されるSN比を $(S_k/N_k) = \sqrt{1000}$ に設定する。このとき、空間分解能と測定時間、エネルギー分解能の関係は図7-4となる。ただし、STEMでのビーム径$2r_2$の関数として示されている。ここで、装置のパラメータを次のように置いた。

α_2	5.2 mrad
β	1×10^9 A/m^2 sr
M	38
C_s	9×10^4 m
ξ_k	10^{-5}
T_s	0.2
D	50 μm/eV
ΔE_s	2.3 eV
ΔE_f	2.8eV（35 μm），3.3eV（60 μm），4.6eV（125 μm）
DQE* (parallel)	0.10 （35 μm），0.60 （60 μm），2.3 （125 μm）
DQE (serial)	0.97

ΔE_sは入射エネルギーの変動に対して帰還制御を行った後の残留成分である[21]。DQE* (parallel) が1より大きいのは、第6章で述べた蛍光板で生じる”チャンネルミキシング効果”のためである[33]。

図7-4中 の3組の実線は並列方式での3種類の厚さの蛍光板に対する値である。また、破線は直列方式での値である。試料上ビーム径が小さい領域では、入射ビームのエネルギー変動成分ΔE_sや 蛍光板での発光領域の広がり成分の分解能換算値ΔE_fによってエネルギー分解能が制限され一定値となる。また、大きい領域では分光器入射ビーム条件によってエネルギー分解能が低下する。

この図に、前節で述べた並列方式を使用したときの測定時間とエネルギー分解能の実測値をそれぞれ▲●で書き入れた。実測値はこの解析値とかなりよく一致している。

この図より次のことが言える。エネルギー分解能を小さくできると言う点では直列検出法が並列検出法よりやや優れている。しかし、観測時間については、並列検出法が２～３桁短い。そこで、同じ観測時間に対して比較した場合、（例えば１０秒）、並列検出法（ｄ＝６０μｍ）は直列検出法よりエネルギー分解能が２倍以上高く、また、空間分解能（２ｒ₂）も１桁以上高い。すなわち、時々刻々変化する現象をとらえるためには並列検出法が極めて有利である事が分かる。

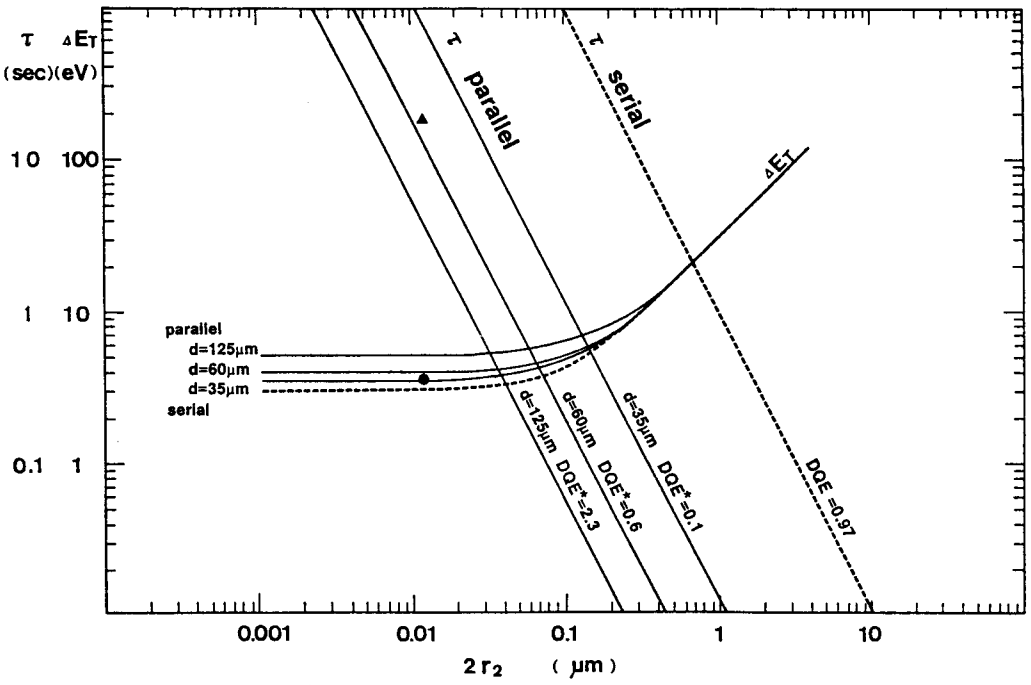


図７-４　空間分解能と測定時間、エネルギー分解能の関係の解析値と測定値

７－５　超高圧並列検出ＥＥＬＳの応用例　[18]

７－５－１　試料温度とコンタミネーション

試料が電子ビームで照射されると試料表面にコンタミネーションが生ずる。これはＥＥＬＳでは測定の障害となる。この原因については、これまでかなり調べられている[42]。試料近傍または試料に付着した炭化水素が電子ビームによって試料面に固着されるのが原因とされている。この対策としては、①試料近傍の真空中の炭化水素を少なくする、②試料に付着している炭化水素を少なくする、③炭化水素が試料面上を自由に移動できないようにする、④炭化水素が試料面に付着しにくいようにする、などが考えられる。ここでは、②④と関連があると考えられる試料温度と、コンタミネーションの付着速度との関係について調べた。

試料には厚さ２０nmのカーボン蒸着膜を用いた。それにビーム径 約２０nmφ、５pAのＳＴＥＭビームを照射し、ＥＥＬＳの測定を行なった。試料近傍の真空度はおよそ10^{-6}Torrである。コンタミネーションの付着量は便宜上スペクトルのゼロ損失ピークの強度で示した。 図７-５はその結果を示す。室温では、数十秒でゼロ損失ピークの強度が数分の一になるほどのコンタミネーションが付着する（曲線Ａ）。電顕内で試料を４４３Ｋに加熱した直後ではコンタミネーションは少なくなるものの付着する （曲線Ｂ）。 ４４３Ｋに１３０分保持した後では、同じ強度の電子ビームを照射しても殆どコンタミネーションは付着しない（曲線Ｃ）。これを３１３Ｋまで降下させて同様に同じ強度の電子ビームを照射しても、僅かしかコンタミネーションは生じていない（曲線Ｄ）。この状態は１０分以上維持できた。これは高い温度で、付着していた炭化水素を除去した効果が持続しているためと考えられる。このように試料を加熱して測定することは、コンタミネーション防止に効果的であることが分かった。

７－５－２　スペクトルの測定例

試作した超高圧並列検出ＥＥＬＳ装置を用いて測定したスペクトルを３例示す。

①試料はＭｇＯ粒子、エネルギー測定範囲７００eV、エネルギー分解能１０eV、測定時間１５s、測定領域約２０nmφで測定した結果を図７-６に示す。酸素の５３２eVのＫ吸収端ピークが観察できる。

②試料はWO_3 粉末で、電子線照射されると照射誘起還元されてWになることが

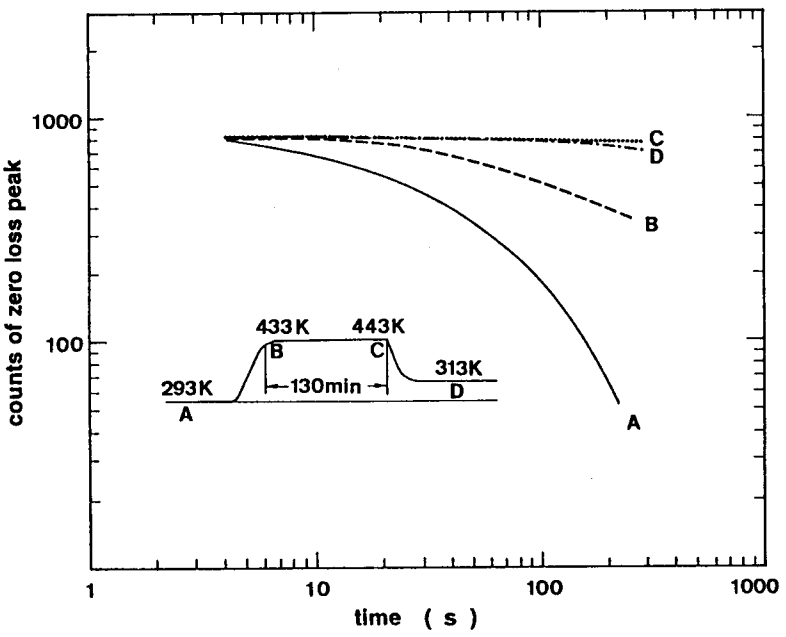


図７-５　試料温度とコンタミネーションの関係

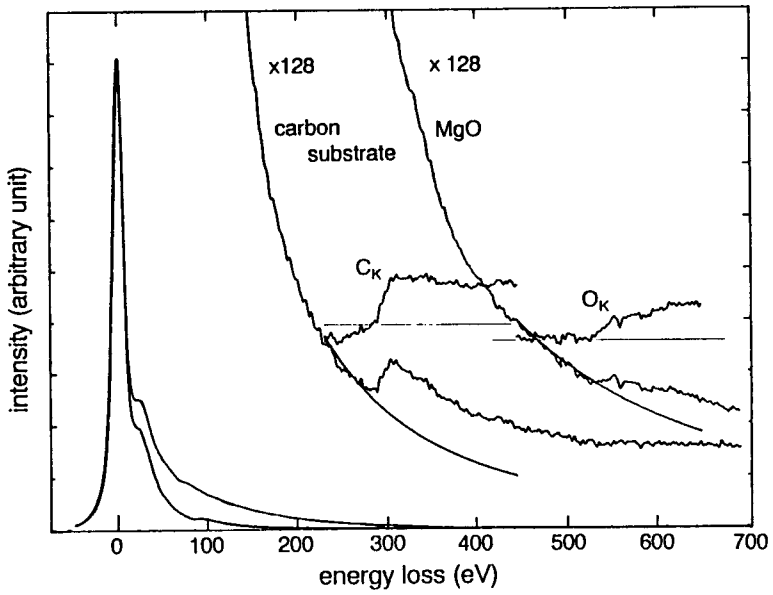


図７-６　ＭｇＯでのＥＥＬＳ測定例

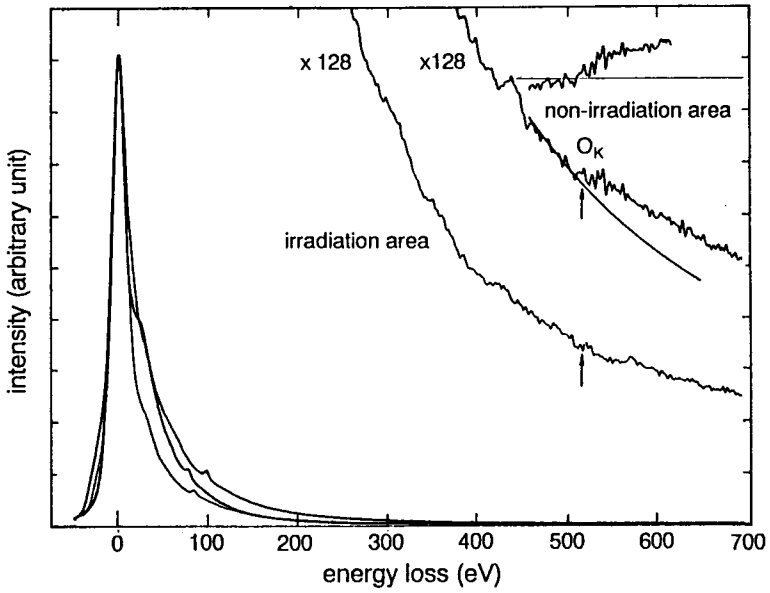


図７-７　WO_3でのＥＥＬＳ測定例

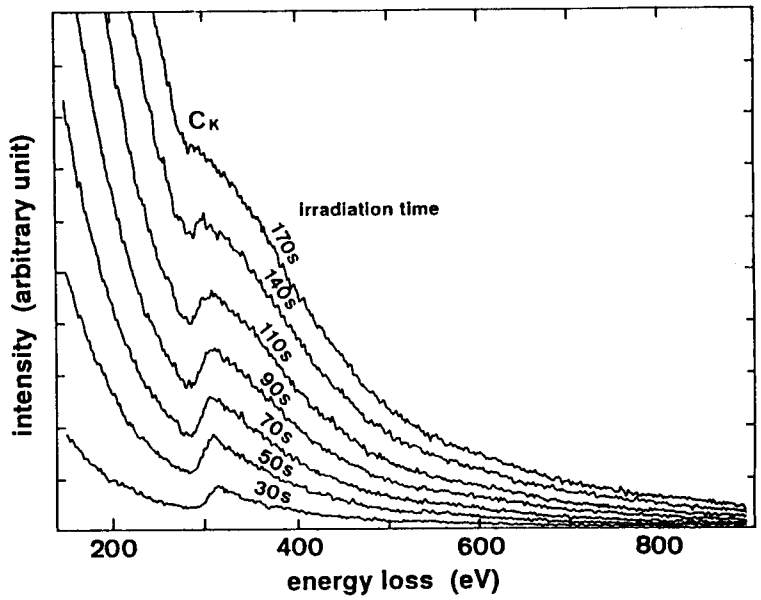


図７-８　電子線照射時間とコンタミネーションの関係

知られている。この試料の一部の領域を2MeV、10^{24} e/m^{2}s の電子ビームで２４００ｓ照射した。 図７-７はこの試料をエネルギー測定範囲７００eV、測定時間１５ｓ、測定領域約２０nmφでＥＥＬＳ測定した結果である。 未照射領域から測定したスペクトルには矢印で示す５３２eVのところに WO_3の酸素のＫ吸収端ピークが検出されている。照射領域から測定したスペクトルには矢印の５３２eVのところに酸素のピークは認められず、WO_3 が電子線照射によって還元されてWになっていることがわかる。この場合、直列検出法では測定時間が長くなるため、未照射領域の部分も測定中に還元されて正しい測定ができない恐れがある。

③図７-８ は電子線照射時間とコンタミネーションの付着量の関係を調べたものである。２０nmのカーボン蒸着膜に約 ２０nmφ、５pAのビームを照射した。一つのスペクトルの測定時間は１０sである。 試料近傍の真空度はおよそ５×10^{-6}Torrである。照射によるコンタミネーションの増加とともに、カーボンのＫ吸収端（２８３.８eV） のピークが最初は増加する。さらに照射すると、非弾性散乱によるバックグラウンドが増加するために、しだいにジャンプレシオ （エッジの山と谷の強度の比で定義）が小さくなる。１７０s照射後は、ピークも判別しにくくなっている。このように急速に変化する現象に対しては、短時間で測定のできる並列検出法が不可欠である。

７－６　むすび

試作した超高圧並列検出ＥＥＬＳ装置の総合特性を測定した。

①直列検出法で測定したエネルギー分解能は約３eVであった。

②並列検出法で測定したエネルギー分解能は、分散が5.6 μm/eV のとき、約１０eVであった。これは並列検出器の蛍光板での発光領域の広がりが影響している。

③並列検出法で分光器分散を５０μm/eVまで大きくし、さらに、スペクトルの位置変動を補償するため、開ループ制御と帰還制御を行なった。その結果、エネルギー分解能は３.８eVまで向上した。

④ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳの空間分解能とエネルギー分解能・測定時間の関係を解析

し、実測値と比較した。空間分解能が０．０１５μmにおけるエネルギー分解能・測定時間の実測値は１５sと３．８eVで、解析値の１８s，４eVとよく一致した。

⑤観測時間が同じ条件で直列および並列検出法を比較した場合、(例えば１０秒)、並列検出法（ｄ＝６０μm） は直列検出法よりエネルギー分解能が２倍以上高く、また、空間分解能（２r_2）も１桁以上高い。 並列方式がエネルギーおよび空間分解能の両面でかなり優れていることが分かる。

その他、超高圧並列検出ＥＥＬＳによるスペクトル測定の２、３の例を示した。

第８章　結言

本論文では、超高圧電子顕微鏡用並列検出ＥＥＬＳを実用化するための超高圧電顕の改良と並列検出器の開発について述べた。得られた成果をまとめると次のようになる。

１）ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳの電子光学系の設計

①最高加速電圧３MVの透過電子顕微鏡として設計された HU-2000型電顕をＳＴＥＭ－ＥＥＬＳとして用いるための電子軌道解析を行った。加速電圧０．５MVの下で、試料上ビーム径が１０nm、分光器光学系のエネルギー分解能が１eV以下になる電顕レンズ系の励磁条件を算出した。

②並列検出器では不可欠な高分散分光器をプリズムと四極子レンズを用いて開発した。１個の四極子で５．６μm/eVの分散値を持つ系を、２個の四極子を用いて５０μm/eVまでの可変分散特性を持つ系を設計し、製作した。

２）電顕ビームの安定度向上

①電顕プローブビームのエネルギーの安定化、すなわち、電顕加速電圧の安定化のため、商用電源に自動電圧安定化装置を取り付けると共に、Ｃ-Ｗ回路駆動電源の帰還安定化回路を手直しし、安定度を約９ｄＢ改善した。

②交流漏洩磁束によるビームの振れを抑えるため、偏向器による振り戻し補償回路とフィラメント直流点火装置を取付け、ビーム径の縮小とビーム輝度を改善した。

３）加速電圧変動の補償

①残留する加速電圧の変動はスペクトルの位置変動となりエネルギー分解能を低下させるので、これを補償する回路を取り付けた。蛍光板の前方に取り付けた偏向コイルと偏向電極を用い、打ち消し制御と帰還制御を行った結果、エネルギー分解能は９．３eVより３．８eVまで改善できた。

②ビームのショット雑音を含む帰還制御系では制御量を最小にする帰還利得があり、これを解析し測定値と合わせた。

４）並列検出器の蛍光板の開発

①蛍光板での発光領域の広がり量を、蛍光体材料や厚さの異なる蛍光板を用意して計測した。発光領域は、厚さ１００μm以上では厚さにほぼ比例す

るが、数十μm以下では厚さに関係しない５０μm程度の限界値に近づくことを見いだした。

②発光領域の広がりを小さくするために、シリコン基板に溝をほり、そこに蛍光体を埋め込んだ構造をもつ蛍光板を開発した。この蛍光板では、発光した光は溝より広がらないことが確認できた。

③蛍光体の支持基板は後方散乱電子を発生し、バックグラウンドレベルを増加させることが分かったので支持基板の無い蛍光板を用いた。

5）並列検出器の検出量子効率の解析

並列検出器ではチャンネル間で信号が混合され、単独の検出器で定義した検出量子効率（ＤＱＥ）の値より見かけ上大きくなることがある。これを”チャンネルミキシング効果”と名付けて解析し、実測値と比較した。

6）並列検出系の評価

ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳの空間分解能とエネルギー分解能・測定時間の関係を一つの図に表し、直列検出法と並列検出法を比較した。エネルギー分解能だけを見ると直列検出法がやや優れているが、測定時間を同じにして比較すると、並列検出法は直列検出法より空間およびエネルギー分解能ともにかなり優れている。並列検出法はこの意味において、その場観測に威力を発揮すると期待できる。

7）ＥＥＬＳの測定例

試作した超高圧並列検出ＥＥＬＳ装置を用いて、コンタミネーションの付着過程などをその場観測し、並列検出法の長所を示した。

8）高加速電圧への適用

本論文では加速電圧５００kVで実験を行った。加速電圧が１０００～３００kV のＳＴＥＭ-ＥＥＬＳを実現するには本論文で述べた問題点はより顕著となってくる。電顕ビームの安定度向上や加速電圧変動の補償の手法は不可欠であると考える。また、蛍光板のより一層の改善も必要となるが、問題の本質が明らかになったため対応が可能と考える。

今後の課題として、下記のような点があげられる。

1）プローブ電流の増加

ＥＥＬＳ測定を効果的に行うには本装置のプローブ電流を増加させる必要がある。これには次の対策が考えられる。

①超高圧電顕はイオンによる試料損傷を防ぐため、輝度の点で劣るタングステンヘアピン陰極を使用している。イオン対策を行い、LaB_6などの他の高輝度陰極に替える。

②透過型電顕専用に設計された対物レンズであり、ＳＴＥＭモード動作時の励磁が不足する。この点の解消が必要である。

③プリズム系の２次の収差は小さく設計されているけれども、完全に補正されていない。これを十分補正すれば、分光器の入射条件が緩和され、検出電流が大きくできる。

2）エネルギー分解能の改善

本論文では、高圧電源、蛍光板などの改善により、エネルギー分解能の最高値として３eVの値を実現したが、ＥＥＬＳ応用の面から考えると分解能１eVの達成が望まれる。これには、高圧電源、ビーム制御機構、分光器収差、および、検出用蛍光板の一層の改善が必要である。

3）試料コンタミネーションの除去

応用研究への活用に際して、大きな問題は試料コンタミネーションである。本論文ではその対策の一つについて述べた。これに加えて高真空の試料室、試料室表面の汚染除去が可能な構造への改良が必要である。また試料そのものの処理技術の向上も併せて行う必要がある。

謝　　辞

本研究を行うに際し、終始懇切な御指導、御教示と御激励をいただいた、大阪大学超高圧電子顕微鏡センター長 裏　克己教授 に厚く感謝いたします。

本論文をまとめるに当たり、懇切な御指導、御教示をいただいた、大阪大学工学部西原　浩教授、藤岡　弘教授、吉野勝美教授、濱口智尋教授、尾浦憲治郎教授、児玉慎三教授 に厚く感謝いたします。

本研究を行う機会を与えて戴き、多大の御指導、御教示を戴いた、前大阪大学超高圧電子顕微鏡センター長 藤田廣志名誉教授 に厚く感謝いたします。

本研究遂行にあたり、多大の御指導、御教示を戴いた、 大阪大学工学部 鷹岡昭夫助教授 に厚く感謝いたします。

本研究を行うにあたり、御助言と御協力を戴いた、大阪大学超高圧電子顕微鏡センター 森　博太郎助教授 に厚く感謝いたします。

本研究において、分光器の設計にあたり、多大の御指導、御教示を戴き、コンピュータープログラムの使用を許可戴いた、大阪大学教養部 松田　久 名誉教授、松尾武清教授に厚く感謝いたします。

本研究遂行にあたり、多くの御助言、御協力を戴き、装置製作に御尽力戴いた、日立製作所　岡野　寛、片桐信二郎、勝田禎治、窪添守起、齊藤尚武、松井　功（５０音順）の諸氏に厚く感謝いたします。

本研究の装置に関し、緻密な装置の製作に御尽力戴き、多大の労力を費やして戴いた日立製作所 宮内恭一氏 に厚く感謝いたします。

本研究を行うにあたり、多大の御協力を戴いた、大阪大学超高圧電子顕微鏡センター 小松正雄技官、坂田孝夫技官 に厚く感謝いたします。

本研究に対し、大阪大学工学部材料物性第二講座の方々、裏研究室の方々をはじめとして、多くの方々から御教示、御協力を戴き、充実した環境の中で研究が進められたことに感謝いたします。

参 考 文 献

[1]
R. F. Egerton and M. Egerton:
An electron energy-loss bibliography,
Scanning Electron Microscopy. Chicago: SEM Inc O'Hare, (1983)119-142

[2]
C. Colliex, T. Manoubi and O. L. Krivanek:
EELS in the electron microscope, A review of present trends,
J. Electron Microsc., 35 (1986) 307-313

[3]
Y. Bando:
Analytical transmission electron microscopy of materials in Japan,
J. Electron Microsc., 38 (1989) S81-S89

[4]
H. Fujita, T. Tabata, K. Yoshida, N. Sumida and S. Katagiri:
Some application of an ultra-high voltage electron microscope on materials science,
Jap. J. Appl. Phys., 11 (1972) 1522-1536

[5]
H. Fujita:
Metallurgical investigations with a 500kV EM,
Jap. J. Appl. Phys., 6 (1967) 214-230

[6]
H. Fujita:
Present achievement and future prospects of in situ experiments with high voltage electron microscopes,
Int. Symp. on In Situ Experiments with HVEM, (1985) 1-24

[7]
E. G. Rightor and G. P. Young:
Probing the chemistry and spectroscopy of radiation-sensitive polymers by parallel-detection EELS,
Proc. of the 12th Int. Congr. for Electron Microscopy, San Francisco (1990) 34-35

[8]
R. F. Egerton:
Parallel-recording systems for electron energy loss spectroscopy (EELS),
J. Electron Microsc. Tech., 1 (1984) 37-52

[9]
H. Shuman and P. Kruit:
Quantitative data processing of parallel recorded electron energy-loss spectra with low signal to background,
Rev. Sci. Instrum., 56 (1985) 231-239
[10]
P. J. Hicks, S. Daviel, B. Wallbank and J. Comer:
An electron spectrometer using a new multidetector system based on a charge coupled imaging device,
J. Phys. E: Sci. Instrum., 13 (1980) 713-715
[11]
D. E. Johnson, K. L. Monson, S. Csillag and E. A. Stern:
An approach to parallel detection electron energy loss spectrometry,
Analytical Electron Microscopy. San Francisco: San Francisco Press, (1981) 205-209
[12]
D. E. Johnson:
Basic aspects of energy loss spectrometer systems,
Ultramicroscopy, 3 (1979) 361-365
[13]
H. Shuman:
Parallel recording of electron energy loss spectra,
Ultramicroscopy, 6 (1981) 163-168
[14]
R. F. Egerton:
Design of a parallel-detection system for ELS,
Proc. 38th Ann. EMSA, (1980) 368-369
[15]
O. L. Krivanek:
Improvement parallel-detection electron-energy-loss spectrometer,
Ultramicroscopy, 28 (1989) 118-121
[16]
R. F. Egerton:
Electron energy loss spectroscopy in the electron microscope,
New York: Plenum Press, (1986) 256-259
[17]
S. Ozasa, Y. Kato, H. Todokoro, S. Kasai, S. Katagiri, H. Kimura, E. Sugata, K. Fukai, H. Fujita and K. Ura:
3 million volt electron microscope,
J. Electron Microsc., 21 (1972) 109-118

[18]
K. Yoshida, A. Takaoka, K. Ura and H. Fujita:
A parallel detection EELS for an ultra-HVEM,
J. Electron Microsc., (to be published)
[19]
P. Kruit and H. Shuman:
Position stabilization of EELS spectra,
J. Electron Microsc. Tech., 2 (1985) 167-169
[20]
K. Yoshida, A. Takaoka, K. Ura and H. Fujita:
A partially metalbacked YAG scintillator for parallel detector in EELS,
J. Electron Microsc., 39 (1990) 273-274
[21]
K. Yoshida, A. Takaoka, K. Ura and H. Fujita:
Position control of electron energy loss spectrum in case of accelerating-voltage fluctuation,
Jpn. J. Appl. Phys., 29 (1990) 2531-2534
[22]
H. Matsuda, S. Fukumoto and T. Matsuo:
Preliminary report on ^{40}Ca - ^{40}Ar mass difference determined with the large dispersion mass spectrometer,
Proc. Third Int. Conference on Atomic Masses, Winnipeg, (1967)733-757
[23]
R. F. Egerton:
A simple electron spectrometer for energy analysis in the transmission microscope,
Ultramicroscopy, 3 (1978) 39-47
[24]
K. Ura, H. Fujita, A. Takaoka, K. Yoshida, S. Katagiri, S. Ozasa, M. Kubozoe and K. Miyauchi:
Present and future of ultra high voltage electron microscope in osaka university,
Proc. Int. Symp. on "Behavior of lattice imperfections in materials-in situ experiments with HVEM", Osaka, (1985) 493-506
[25]
K. Yoshida, A. Takaoka, K. Ura and H. Fujita:
Measurement of electron beam diameter fluctuated by AC magnetic field,
J. Electron Microsc., 39 (1990) 71-72

[26]
H. T. Pearce Percy:
The design of spectrometers for energy-loss spectroscopy,
Scanning Electron Microscopy, 1 (1978) 41-51
[27]
W. Engel:
A versatile spectrograph for a STEM,
9th Int. Congr. on Electron Microscopy, Toronto, 1 (1978) 48-49
[28]
K. Yoshida, K. Ura, H. Matsuda, H. Fujita and M. kubozoe:
Design of a high-dispersion magnetic spectrometer for EELS,
Optik, 71 (1985) 11-14
[29]
K. Yoshida, A. Takaoka, K. Ura and H. Fujita:
Thickness effect of fluorescent screen on energy resolution
of parallel detection EELS for an UHVEM,
J. Electron Microsc., 37 (1988) 229-231
[30]
R. F. Egerton and P. A. Crozier:
A compact parallel-recording detector for EELS,
J. Microscopy, 148 (1987) 157-166
[31]
O. L. Krivanek, C. C. Ahn and R. B. Keeney:
Parallel detection electron spectrometer using quadrupole lenses,
Ultramicroscopy, 22 (1987) 103-116
[32]
K. Yoshida, A. Takaoka, K. Ura, T. Katsuta and I. Matsui:
Grooved fluorescent plate for parallel detection electron energy
loss spectroscopy in ultra high voltage electron microscope,
Ultramicroscopy, 39 (1991) 45-49
[33]
K. Yoshida, A. Takaoka and K. Ura:
Channel mixing effect on SN-ratio of electron energy loss spectrum
in parallel detector,
J. Electron Microsc., 40 (1991) 319-324
[34]
J. J. Livingood:
The optics of dipole magnet,
Academic Press (1969)

[35]
H. A. Enge:
Deflecting magnets,
Focusing of Charged Particles (Ed. by A. Septier), Vol. 2 Chapt. 4. 2,
Academic Press, (1967) 203-263
[36]
H. Wollnik:
Second order transfer matrics of real magnetic and electrostatic sector fields,
Nuclear Instrum. Meth., 52 (1967) 250-272
[37]
T. Matsuo, H. Matsuda, Y. Fujita and H. Wollnik:
Computer program "TRIO" for third order calculation of ion trajectory,
Mass Spectrosc. 24 (1976) 19-62
[38]
H. Wollnik:
The correction of image aberration of second order for mass or energy separators consisting of one single magnetic sector field,
Nuclear Instrum. Meth., 53 (1967) 197-215
[39]
K. Yoshida, K. Ura, H. Fujita, M. Kubozoe and K. Miyauchi:
Parallel detecting system for EELS of UHVEM,
Proc. 6th Int. Congr. Electron Microsc., Kyoto, (1986) 915-916
[40]
L. Reimer:
Spatial beam broadening,
Scanning Electron Microscopy, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, (1985) 87-89
[41]
K. Murata:
Spatial distribution of backscattered electrons in the scanning electron microscope and electron microprobe,
J. of Appl. Phys., 45 (1974) 4110
[42]
矢田慶治:
コンタミネーション,
電子顕微鏡、16 (1981) 2-10

[43]
裏　克己
電子光学
共立出版
[44]
J.Orloff:
On addition of spherical and chromatic aberration of a pair of electron lenses
Optik, 63 (1983) 369-372
[45]
G.Liebmann and J.Brit:
J. Appl. Phys., 1 (1950) 92
[46]
P.G.Hawkes:
Electron optics and electron microscopy,
Taylor & Francis LTD., London, (1972)

関 連 発 表 論 文

1

Design of a High-dispersion Magnetic Spectrometer for EELS
K. YOSHIDA, K. URA, H. MATSUDA and H. FUJITA and M. KUBOZOE
Optik Vol. 71, No. 1 (1985) 11-14

2

Present and Future of Ultra High Voltage Electron Microscope in Osaka University
K. URA, H. FUJITA, A. TAKAOKA, K. YOSHIDA, S. KATAGIRI, S. OZASA, M. KUBOZOE and K. MIYAUCHI
Proc. of Int. Symp. on "Behavior of Lattice Imperfections in Materials - In Situ Experiments with HVEM", Osaka, Nov., (1985) 493-506

3

Parallel Detecting System for EELS of UHVEM
K. YOSHIDA, K. URA, H. FUJITA, M. KUBOZOE and K. MIYAUCHI
Proc. 6th Int. Cong. on EM, Kyoto, (1986) Vol. 2, 915-916

4

Thickness Effect of Fluorescent Screen on Energy Resolution of Parallel Detection EELS for an UHVEM
K. YOSHIDA, A. TAKAOKA, K. URA and H. FUJITA
J. Electron Microscopy Vol. 37, No. 5 (1988) 229-231

5

Measurement of Electron Beam Diameter Fluctuated by AC Magnetic Field
K. YOSHIDA, A. TAKAOKA, K. URA and H. FUJITA
J. Electron Microscopy Vol. 39, No. 1 (1990) 71-72

6

A Partially Metalbacked YAG Scintillator for Parallel Detector in EELS

K. YOSHIDA, A. TAKAOKA, K. URA and H. FUJITA

J. Electron Microscopy Vol. 39, No. 4 (1990) 273-274

7

Position Control of Electron Energy Loss Spectrum in Case of Accelerating-Voltage Fluctuation

K. YOSHIDA, A. TAKAOKA, K. URA and H. FUJITA

J. J. A. P. Vol. 29, No. 11 (1990) 2531-2534

8

Grooved Fluorescent Plate for Parallel Detection Electron Energy Loss Spectroscopy in Ultra High Voltage Electron Microscope

K. YOSHIDA, A. TAKAOKA, K. URA, T. KATSUTA and I. MATSUI

Ultramicroscopy Vol. 39, Nos. 1-4, (1991) 45-49

9

Channel Mixing Effect on SN-ratio of Electron Energy Loss Spectrum in Parallel Detector

K. YOSHIDA, A. TAKAOKA and K. URA

J. Electron Microscopy Vol. 40, No. 5 (1991) 319-324

10

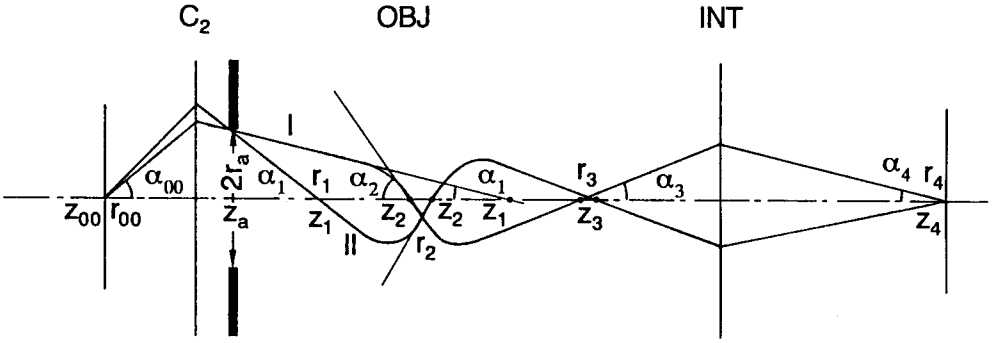
A Parallel Detection EELS for an Ultra-HVEM

K. YOSHIDA, A. TAKAOKA, K. URA and H. FUJITA

J. Electron Microscopy, (to be published)

付録A　HU－2000型電顕のSTEM動作の軌道計算

図A-1はSTEMの光線図であり、この図に従って軌道解析を行なう。図A-1で用いられる記号は表A-1の通りである。



図A-1　STEMの光線図

表A-1　図A-1で用いる記号

	位　置	開き半角	ビーム半径
第二集束レンズによる像または漸近像	z_1	α_1	r_1
対物レンズによる像　（試料面）	z_2	α_2	r_2
対物レンズ後磁場による像　（中間像面）	z_3	α_3	r_3
中間レンズによる像　（分光器物面）	z_4	α_4	r_4

（i）仮想光源とその縮小像

以下の解析では、電子銃、加速管と第一集束レンズの条件は固定する。加速管出射面で見た仮想源は、電子銃の上方８，２８３㎜の位置にできる。この値は、加速管内の電界が陰極から均一と仮定し、さらに、相対論補正して算出した。電子銃陰極はタングステンヘアピンであり、そのクロスオーバー径を７０μｍと仮定した。このとき、仮想源の直径は２ｒｂ＝１７０μｍとなる。この仮想源は焦点距離ｆｃ１が２０㎜の第一集束レンズで縮小結像される。その直径は、

$$2r_{00} = 170 \times 20 / 14,107 = 0.241\ \mu m \qquad (A-1)$$

となる。この縮小光源の位置と大きさ２ｒ００を基にして、電顕レンズ系の励磁強度とビーム径の関係を以下に求める。

（ii）ＳＴＥＭ－ＥＥＬＳでの使用レンズ

図Ａ-１に示すように、縮小光源２ｒ００よりのビームは半径ｒａの絞りをもつ第二集束レンズを通って対物レンズ領域に入射し、対物レンズの前磁場により試料上に縮小結像する。試料からのビームは、対物レンズ後磁場により中間像を作り、さらに、中間レンズにより分光器入射面に結像する。

第二集束レンズの使い方として、対物レンズの手前にクロスオーバーを作らない場合（I）と作る場合（II）の二つの条件がある。第二集束レンズによるビームの結像面または漸近的結像面がｚ１である。ただし、ｚ１は対物レンズのギャップ中心より計測した距離である。（I）の条件ではｚ１＞０であり、（II）の条件ではｚ１＜０である。以下の計算において、このｚ１を第二集束レンズの励磁強度を示すパラメータとして用いる。上記の光学系では第二集束レンズ絞り径２ｒａが１５０μｍφ以下のとき、集束レンズ系の収差項は無視できる。このとき、ｚ１でビーム径２ｒ１は簡単な式となる。

$$2r_1 = 2r_{00} \times (77.5 + 380 - z_1) / 343.5 \qquad (A-2)$$

また、開き半角α１は絞り半径ｒａより次式となる。

$$\alpha_1 = r_a / (z_1 - z_a) \qquad (A-3)$$

ここで、z_aは絞りの位置である。

（iii）試料面のビーム径と開き角

対物レンズで縮小したビームクロスオーバーの位置をz_2、ビームの開き半角をα_2、倍率をM_{obj}とする。対物レンズの磁界分布を与えたとき、近軸諸量は近軸軌道方程式より計算する。対物レンズの収差係数は収差積分公式より計算する[43]。試料面でのビーム径を、近軸像の大きさ、レンズの球面収差によるビーム径の広がり、色収差によるビーム径の広がり、および、回折収差によるビーム径の広がりの２乗和の平方で表す。

$$(2r_2)^2 = (2M_{obj} r_1)^2 + (C_s^*{}_{obj} \alpha_2^3/2)^2 + (C_c^*{}_{obj}(\Delta E/E)\alpha_2)^2 + (1.22\lambda/\alpha_2)^2 \qquad (A-4)$$

ここで、$C_s^*{}_{obj}$, $C_c^*{}_{obj}$は像側で定義した対物レンズの球面および色収差係数である。 λは電子の波長で、５００kVで1.42×10^{-12}mとなる。計算結果を図２-４に示した。

（iv）分光器入射面のビーム径

初めに、対物レンズの後磁場が作る中間像の位置z_3、開き半角α_3、および、その大きさ$2r_3$を求める。 その際、対物レンズを一体として取り扱う。すなわち、第二集束レンズの像点（z_1）より軌道と収差を計算する。 このとき、物と像の位置が対物レンズの界内にあることも予想されるので、いわゆる漸近結像の軌道理論および収差公式を用いる[43]。このときの近軸倍率、球面収差係数、色収差係数を$\tilde{M}_{obj}$、$\tilde{C}_s^*{}_{obj}$、$\tilde{C}_c^*{}_{obj}$ で表す。

つぎに、分光器入射面z_4（固定位置）でのビーム径$2r_4$を求める。これは中間像$2r_3$の中間レンズによる像である。 中間レンズの倍率、球面収差係数、色収差係数をそれぞれM_{int}、$C_s^*{}_{int}$、$C_c^*{}_{int}$ と置くと、$2r_4$は次式となる。

$$(2r_4)^2=(2r_1\tilde{M}_{obj}M_{int})^2+(C_s^*{}_{tot}\alpha_4^3/2)^2$$
$$+(C_c^*{}_{tot}(\Delta E/E)\alpha_4)^2+(1.22\lambda/\alpha_2)^2 \qquad (A-5)$$

ここで、

$$C_s^*{}_{tot} = C_s^*{}_{int} + \tilde{C}_s^*{}_{obj}\ M_{int}^4$$
$$C_c^*{}_{tot} = C_c^*{}_{int} + \tilde{C}_c^*{}_{obj}\ M_{int}^2$$

で表される[44]。

近軸倍率は中間像点z_3の関数として、この光学系に対して次式となる。

$$M_{int} = 2758.8/(598.5-z_3) \qquad (A-6)$$

中間レンズの収差係数は、磁極のボアー径とギャップ間距離より簡易的に求めた[45]。また、収差係数の倍率依存性として倍率M_{int}に対する多項式展開を利用した[46]。ビーム径$2r_4$の計算結果は図2-4および2-5（a），2-5（b）に示した。

付録B　使用記号一覧表

〔プリズムの軌道半径Rで規格化して表す場合は斜体文字で示す〕

A	増幅器利得	
A_0	$\omega = 0$ での帰還ループ利得	
A_{NFB}	帰還回路の閉ループ利得	
$A(\omega)$	帰還ループ利得	
B_Q	四極子の磁極磁場	
CH_i	測定スペクトルのiチャンネルのカウント数	
C_c^*	像側で定義したレンズの色収差	
C_s^*	像側で定義したレンズの球面収差	
D	分光器の運動量分散	
D_E	分光器のエネルギー分散	
E	電子のエネルギー	
E_s	蛍光板に入射する電子のエネルギー	
E_p	光子のエネルギー	
ΔE	電子のエネルギー変化	
ΔE_B	分光器のエネルギー分解能	
ΔE_a	入射ビームのエネルギー変動成分	
ΔE_f	蛍光板での発光領域の広がり成分の分解能換算値	
ΔE_T	並列検出器の総合エネルギー分解能	
G_1	蛍光板での電子から光子への変換効率	（第6章）
G_2	蛍光板から光電子像倍管の光電面までの伝送効率	（第6章）
G_3	光電面の光子から電子への変換効率	（第6章）
$G_1(\omega)$	フィルターを含む増幅器の利得	（第4章）
$G_2(\omega)$	偏向器の偏向感度	（第4章）
H_1, H_2	カウント数の積分値	
I	レンズ励磁電流	
I_0	検出器に入射する電流	
I_d	検出器の暗電流	
I_s	実効的ビーム電流　$I_s = I_0 \times DQE$	
I_k	k番目のチャンネルに入射する電流	
I_s	試料に入射する電流	
K_{Q1}	前段の四極子レンズの強度	
K_{Q2}	後段の四極子レンズの強度	
L_1	プリズム磁極の入射端面から物点までの距離	

L_2	プリズム磁極の出射端面から四極子の入射端面までの距離	
L_3	分光器出射端面から結像面までの距離	
L_4	前段の四極子の出射端面から後段四極子の入射端面までの距離	
L_Q	四極子の長さ	
M	レンズ倍率	
N	レンズ励磁コイル巻数	
N_0	検出器入力側での雑音	
$N_1(\omega, I_e)$	$n_1(t, I_e)$ の周波数スペクトル	
$N_2(\omega)$	$n_2(t)$ の周波数スペクトル	
N_3	光電変換面での電子に対する雑音	
N_k	k番目のチャンネルで検出した雑音	
N_s	回路雑音	
N_t	K吸収端での測定スペクトルの雑音	
R	プリズムの軌道半径	
R_Q	四極子の磁極の半径	
S_0	検出器入力側での信号	
S_3	光電変換面での電子に対する信号	
S_k	k番目のチャンネルで検出した信号	
S_t	K吸収端での測定スペクトルの信号	
T_s	試料およびレンズ系のビーム電流透過率	
$X(\omega)$	$x(t)$ の周波数スペクトル	
$Y(\omega)$	$y(t)$ の周波数スペクトル	
a	電子ビーム強度の半値幅	
b	蛍光板の発光領域の厚さに比例する項の半値幅	
c	蛍光板の発光領域の厚さに比例しない項の半値幅	
d	蛍光板厚さ	
e	電子の電荷	
f_{c1}	第一集束レンズの焦点距離	
j	定数	
k	比例定数	
m	電子の質量	（第2章）
m	測定の積算回数	（第6章）
n_0	電子の個数	
$n_1(t, I_e)$	検出電流の量子雑音の電圧換算値	
$n_2(t)$	増幅器雑音	
n_r	検出器で発生する雑音に対応する光電子数	
p	並列検出器において信号が混合されるチャンネル数	

r_{00}	第一集束レンズで縮小された縮小光源の半径
r_1	第二集束レンズによる像または漸近像のビーム半径
r_2	対物レンズによる像（試料面）のビーム半径
r_3	対物レンズ後磁場による像（中間像面）のビーム半径
r_4	中間レンズによる像（分光器物面）のビーム半径
$2r_5$	分光器結像面における像の分散方向の広がり幅
r_a	第二集束レンズの絞り半径
r_b	電子ビーム仮想源の半径
r_{ci}	レンズの色収差によるビーム径の広がり半径
r_{di}	レンズの回折収差によるビーム径の広がり半径
r_{gi}	前段でのビーム径を物とする近軸像の半径
r_{si}	レンズの球面収差によるビーム径の広がり半径
u	分光器結像面における電子軌道（分散方向）
v	分光器結像面における電子軌道（分散と直角方向）
u_0	分光器入射面における軌道初期値 （中心軌道から分散方向の位置）
v_0	分光器入射面における軌道初期値 （中心軌道から分散と直角方向の位置）
w	蛍光板の発光領域の半値幅
w_0	蛍光板が十分薄い時の発光領域の広がり半値幅
x（t）	偏向器入射面でのビームの振れ
y（t）	負帰還時の蛍光板上でのビームの振れ
z_1	第二集束レンズによる像または漸近像の位置
z_2	対物レンズによる像（試料面）の位置
z_3	対物レンズ後磁場による像（中間像面）の位置
z_4	中間レンズによる像（分光器物面）の位置
Φ	加速電圧
Φ^*	相対論補正された加速電圧
α_1	第二集束レンズによる像または漸近像の開き半角
α_2	対物レンズによる像（試料面）の開き半角
α_3	対物レンズ後磁場による像（中間像面）の開き半角
α_4	中間レンズによる像（分光器物面）の開き半角
α_0	分光器入射面における軌道初期値 （中心軌道に対する分散方向の角度）
β_0	分光器入射面における軌道初期値 （中心軌道に対する分散と直角方向の角度）
β	ビーム輝度

γ	帰還回路の帰還比
δ	分光器に入射する電子ビームの相対運動量偏移
η	蛍光板のエネルギー変換効率　（第６章）
η（I_e）	ゼロ損失ピークの移動に対する検出器感度　（第４章）
θ_1	プリズムの入射端部角
θ_2	プリズムの出射端部角
λ	電子ビームの波長
ξ	検出器入射電流に含まれる電子数と測定対象エネルギー領域の１チャンネルに入射する電子数の比
ξ^*	検出器入射電流に含まれる電子数と測定対象エネルギー領域でスリットを通過する電子数の比
ξ_k	全電流とｋ番目のチャンネルに入射する電流の比
$\rho_1 = R/R_{in}$	プリズム入射端部の曲率、　R_{in}は入射端部の曲率半径
$\rho_2 = R/R_{out}$	プリズム出射端部の曲率、　R_{out}は出射端部の曲率半径
τ	測定時間
τ_0	１チャンネルあたりの測定時間
ϕ	プリズムの偏向角
ϕ（ω）	帰還ループ位相偏移
ϕ_1（ω）	フィルターを含む増幅器の位相偏移
ϕ_2（ω）	偏向器の位相偏移
ω_c	遮断周波数