MICROSCOPE ÉLECTRONIQUE 400 kV A LENTILLES SUPRACONDUCTRICES

1. DESCRIPTION GÉNÉRALE DU CRYOSTAT ET DU MONTAGE

A. LABERRIGUE, P. LEVINSON et J.-C. HOMO

Laboratoire de physique Théorique du Collège de France
11, place Marcellin-Berthelot, Paris 5^e

(Reçu le 15 juillet 1971)

Résumé. — Nous décrivons le cryostat qui permet de refroidir les enroulements excitateurs supraconducteurs des cinq lentilles du microscope. Nous précisons aussi comment le montage est fait et donnons la consommation d'hélium liquide (1,4 l/h) et la pression limite (2×10^{-8} torr) en fonctionnement normal.

Abstract. — We describe the cryostat which is used to cool the superconducting coils of the five microscope lenses. The apparatus general assembling, the helium consumption (1,4 l/h), the limit pressure (2×10^{-8} torr) are given.

Introduction. — Nous avons annoncé pour la première fois au Congrès de Microscopie électronique de Rome (1968) [1] la construction d'un microscope électronique 400 kV ayant toutes ses lentilles magnétiques supraconductrices. Les premières microphotographies obtenues avec cet appareil ont été présentées, deux ans plus tard, au Congrès International de Grenoble [2]. Les images que nous pouvions présenter à cette époque étaient obtenues avec des grandissements directs compris dans la gamme ($\times 10\,000$ à $\times 50\,000$), et pour une tension accélératrice de 200 kV. Il nous est maintenant possible d'utiliser couramment l'appareil à 400 kV et nous obtenons des images de bonne qualité à des grandissements $\times 130\,000$ et aussi, des images très nettes à plus faible grandissement mais avec des temps de pose de plus de quatre minutes montrant une très bonne stabilité électrique et mécanique [3]. Après avoir indiqué les principes qui nous ont dirigés dans la conception du cryostat dans cette application en microscopie électronique, nous faisons une description détaillée de l'ensemble, nous précisons comment sont résolus les problèmes posés par le montage et nous terminons par quelques résultats montrant le bon fonctionnement cryogénique et mécanique.

I. Conception de l'appareil. — Le vide d'isolement thermique d'un cryostat contenant de l'hélium liquide étant un vide propre et très poussé et ces qualités du vide étant justement requises dans la colonne optique d'un microscope électronique, nous avons choisi de mettre le cryostat dans la colonne elle-même.

D'autre part, en ce qui concerne le type de lentille supraconductrice à retenir, une étude préalable faite

au laboratoire par plusieurs chercheurs nous a conduits à choisir les lentilles à carcasse en fer à température ordinaire, seul l'enroulement excitateur supraconducteur étant à refroidir à l'aide de l'hélium liquide.

En retenant les lentilles du type précisé, nous nous refusions d'utiliser les lentilles supraconductrices ayant les caractéristiques optiques les meilleures possibles mais nous gagnions en simplicité relative de réalisation. De toute façon, comme il est montré par ailleurs [5], les qualités de l'objectif sont telles que déjà un pouvoir séparateur théorique de $1,5\text{ Å}$ est obtenu et, même, il n'est pas exclu de remplacer l'objectif actuel par une lentille entièrement froide (à 4 °K) si besoin en était.

Une des lentilles du microscope est représentée figure 1a. On a considéré que pour une telle lentille le problème du centrage de l'enroulement excitateur par rapport à la partie ferromagnétique n'était pas assez critique pour qu'il soit utile de prévoir un déplacement de cet enroulement associé à toute translation de la carcasse en fer parallèle à un plan horizontal. Le cryostat peut donc être en un seul bloc rigide avec les dérivations appropriées pour contenir chacune des cinq bobines. Un inconvénient du type de lentille de la figure 1a est, en ce qui concerne l'objectif, qu'il n'est pas aisé de prévoir un canal approprié, au voisinage du plan médian $x'x$ de la lentille pour laisser passer un porte-diaphragme de type classique à 300 °K (ou 77 °K). Les lentilles des figures 1b et 1c posent moins de difficultés mais elles deviennent beaucoup plus encombrantes si on envisage leur utilisation en microscopie à très très haute tension. Voulant montrer que notre conception d'un microscope supraconducteur était généralisable dans ce dernier domaine, nous avons

retenu une lentille du type 1a pour l'objectif comme pour les autres lentilles, car cette lentille se rapproche davantage de celles utilisables dans ce cas. Le problème du porte-diaphragme a été réglé de façon satisfaisante.

FIG. 1a.

FIG. 1b.

FIG. 1c.

FIG. 1. — Différents types de lentilles supraconductrices.

Avec ces conceptions le cryostat approprié a, pour sa partie qui doit être à environ 4 °K, une surface extérieure qui est au minimum de 3 000 cm². Il nous a donc semblé opportun de prévoir des écrans thermiques refroidis à 77 °K grâce à une réserve d'azote liquide pour diminuer la consommation d'hélium liquide due aux pertes par rayonnement.

Ce problème de la recherche d'une consommation minimum d'hélium liquide nous a, à tout moment, très largement influencé. En particulier, comme il est précisé par ailleurs [5], deux moitiés de tube conducteur en laiton suffisent pour alimenter en courant les cinq enroulements supraconducteurs des lentilles. Les pertes par conductibilité peuvent donc être relativement faibles sans qu'il soit nécessaire de prévoir une hauteur exagérée pour le col du cryostat.

II. Description du cryostat. — La figure 2 représente la partie du cryostat refroidie à l'aide de l'hélium liquide. La majeure partie du cryostat est en acier inoxydable, les cinq réservoirs des bobines sont en laiton avec un couvercle soudé à l'aide d'une soudure indium-étain. De cette façon il est possible de changer

les bobines, ce qui était indispensable à prévoir dans une période d'essais.

Sur la figure 2 on distingue les cinq réservoirs contenant les enroulements supraconducteurs des lentilles : condenseurs C₁ et C₂, objectif (Obj.), lentille intermédiaire (L. I.) et projecteur (P.). En A se trouve un petit renflement contenant les interrupteurs supraconducteurs thermiques placés sur chacune des bobines et le transformateur statique dont le secondaire

FIG. 2. — Cryostat tel qu'il est placé sur son support lors du montage de la colonne optique. Les chapeaux des réservoirs A et B ne sont pas placés. Les écrans à 77 °K ne sont à leur place que pour le tube vertical du cryostat et ces deux réservoirs A et B. On peut voir l'un des deux tuyaux descendant le long du tube vertical du cryostat. La hauteur globale du cryostat est de 1,20 m.

supraconducteur est placé en série avec l'enroulement de l'objectif. Ce transformateur permet d'assurer les réglages fins de focalisation de l'objectif [5]. Le réservoir B est la réserve d'hélium. Elle est de capacité relativement faible : entre les niveaux B_1 et B_2 la capacité n'est que de 0,6 litre. La partie C est le col proprement dit du cryostat. Le réservoir d'azote n'est pas représenté sur cette photographie, on peut le voir figure 4a en D. Il se trouve au-dessus de la bobine C_1 et est percé d'un canal central de 10 mm de diamètre pour le passage du faisceau d'électrons. Sa capacité est de 1,5 litre. De l'azote liquide descend tout le long du tube vertical du cryostat à l'intérieur de deux tuyaux soudés aux écrans en cuivre. Au milieu de ces tuyaux se trouve un petit tube qui produit un effet de thermosiphon. Le cryostat est supporté au niveau F_1 qui est à la température ambiante et une bonne stabilité mécanique est assurée grâce à d'autres

fixations que nous précisons. En F_2 la partie à 4 °K est reliée aux écrans à 77 °K par une liaison à forte impédance thermique. De plus, au niveau de chaque bobine, le réservoir est retenu par des tiges en fibre de verre (deux par réservoir). Ces tiges tirent le réservoir vers le bas et réagissent aux forces électromagnétiques qui s'exercent sur chaque bobine quand elles sont chargées d'un courant. Ces forces sont, pour une excitation normale, de l'ordre du kilogramme-poids suivant le soin apporté au centrage en hauteur de la bobine dans l'entrefer de la lentille. La conductibilité thermique de ces tendeurs en fibre de verre est si petite qu'on a pu les utiliser pour relier directement les points de fixation à 4 °K sur le réservoir concerné à des points à 300 °K pris sur la colonne externe du microscope.

On peut voir, figure 3a et b, comment les opérations de montage s'effectuent pour un étage, ici celui de la lentille intermédiaire. Sur cette même figure on distingue une des deux fixations relativement souples qui relient à chaque étage la partie du cryostat à 77 °K au plateau P_1 (ou à son homologue). Ce plateau P_1 supporte la carcasse ferromagnétique de la lentille de l'étage. Comme il est pratiquement impossible de placer la bobine excitatrice au niveau exact pour lequel

FIG. 3a. — Détail de 2 montrant comment est monté un étage (ici celui de la lentille intermédiaire). La boîte contenant la bobine excitatrice du projecteur est recouverte de son écran 77 °K. Le plateau P_1 en aluminium est le support de la carcasse ferromagnétique de la lentille intermédiaire.

FIG. 3b. — La carcasse ferromagnétique de la lentille intermédiaire est en place. Les pièces polaires proprement dites ne sont mises, pour chaque lentille, qu'une fois la colonne installée en dessous du canon.

les forces électromagnétiques qui la sollicitent vers le haut et vers le bas se compensent rigoureusement, on a choisi un décalage tel que la carcasse en fer, soumise aux forces opposées, est appliquée sur le plateau par ces dernières. La figure 3b montre comment une chemise externe est descendue une fois la lentille de l'étage installée. On distingue sur la gorge supérieure de la chemise inférieure un joint torique d'étanchéité. Il est en viton. Nous avons prévu de remplacer ces joints par des joints indium, mais dans une période d'essais il a été jugé prudent d'éviter une complication supplémentaire dans les opérations : montage, démontage...

La figure 4a montre la colonne quand les 5 lentilles sont placées, ainsi que les chemises extérieures. En S on distingue le niveau du sas objet.

La figure 4b représente la colonne complète. On distingue en T_1 et T_2 les tubes par lesquels les transferts d'hélium liquide sont possibles comme il sera précisé dans le paragraphe sur le fonctionnement. Une journée de travail est suffisante pour que deux personnes

qualifiées montent complètement cette colonne à partir des éléments rassemblés dans une armoire appropriée et, bien entendu, le cryostat proprement dit étant dans la situation présentée figure 2a, c'est-à-dire les bobines à leur place dans leur réservoir et les couvercles de ceux-ci étant soudés.

FIG. 4a. — Colonne optique une fois l'assemblage presque terminé. On distingue en D le réservoir d'azote liquide et en S le sas objet.

FIG. 4b. — Colonne optique complète avant son installation au-dessous du canon d'électrons 400 kV. T_1 et T_2 sont les ouvertures par lesquelles, respectivement, le premier remplissage du cryostat et les remises au niveau B_2 sont effectués.

III. Fonctionnement. — Le cryostat est conçu pour être refroidi à partir de l'hélium liquide contenu dans un bidon (de 25 l par exemple). Mais il est très concevable de prévoir un fonctionnement en circuit fermé d'hélium par liaison directe à un liquéfacteur de très faible puissance. Dans ce cas l'hélium gazeux dégagé par le cryostat peut être récupéré et, après les précautions d'usage, utilisé à nouveau par le liquéfacteur.

Nous présentons ici le fonctionnement seul utilisé jusqu'à présent.

1° REFOIDISSEMENT. — Deux possibilités sont à retenir suivant le temps dont on dispose quand on refroidit le cryostat pour la première fois.

a) C'est la plus économique en hélium liquide. Le réservoir D étant rempli d'azote liquide, on prérefroidit le cryostat à 77 °K en le remplissant complètement d'azote liquide lui aussi, par la voie prévue pour le refroidissement à 4 °K (tube T₁, Fig. 3). On chasse ensuite cet azote liquide par aspiration. L'ensemble de ces premières opérations dure 3,5 heures. On met ensuite la bouteille d'hélium liquide de 25 litres en place et, en pompant sur l'hélium, on remplit le cryostat. Cette dernière opération dure une heure et exige 2 litres d'hélium liquide.

b) Il est plus rapide (il faut 3 h) et, surtout plus simple, de faire directement le transfert d'hélium liquide toujours par la voie T₁, figure 4b, mais cela demande 5 litres d'hélium liquide.

Il est important de faire remarquer que si, à la suite d'une journée de travail avec le microscope, on prend la peine de maintenir les écrans thermiques à 77 °K par un remplissage automatique du réservoir D, après un ou même plusieurs jours, l'opération de refroidissement à 4 °K par la méthode b ne dure qu'une heure et demande 2 litres d'hélium liquide.

2° FONCTIONNEMENT NORMAL. — Le cryostat une fois rempli d'hélium jusqu'au niveau B₁ le transfert est arrêté. L'opérateur qui utilise le microscope peut travailler une demi-heure sans avoir à intervenir pour un nouveau remplissage, les opérations de réglage et d'observation étant celles qui sont habituelles en microscopie électronique. Dès que le niveau B₁ est atteint, une remise au niveau B₂ est nécessaire. Elle se fait par la voie T₂, figure 4b et, actuellement par intervention manuelle de l'opérateur qui déclenche la remontée d'hélium par pompage. Des signaux sonores avertissent l'opérateur chaque fois que les niveaux B₁ ou B₂ sont atteints et il peut très bien, pendant la remontée d'hélium, continuer ses observations à l'aide du microscope. Nous allons d'ailleurs rendre toute cette partie de remise à niveau entièrement automatique mais dès à présent une seule personne est nécessaire pour l'utilisation du microscope.

La consommation d'hélium en cours de fonctionnement est de 1,4 litre de liquide par heure, ce qui est une excellente performance étant donnée la complexité du problème de refroidissement de toutes les lentilles d'un microscope. Il nous semble possible d'améliorer différents éléments et d'aboutir, en fin de compte, à une consommation maximum de 1 litre de liquide par heure. Mais déjà nos résultats actuels nous permettent de fixer à 1,5 watt la puissance, à 4 °K, du liquéfacteur nécessaire pour le bon fonctionnement de l'ensemble.

Nous voudrions à propos de ce fonctionnement faire une remarque importante relative aux craintes manifestées par certains au sujet des vibrations qui pourraient être créées par le phénomène d'ébullition du liquide hélium. En fait, on peut toujours abaisser la température au-dessous de 4 °K en pompant sur l'hélium. La température du liquide en ébullition est alors

celle correspondant à la nouvelle pression du gaz. Dans le cas où les pertes thermiques ne sont pas très grandes on peut remettre le cryostat à la pression atmosphérique avant que le liquide du cryostat n'ait le temps de retourner à 4,2 °K. Dans ces conditions, le liquide ne peut bouillir et donc les vibrations dues au bouillonnement ne sont pas à redouter. Pour fixer des ordres de grandeur dans le cas de notre cryostat il suffit d'abaisser la pression de quelques centaines de torr pour que, pendant dix minutes, toute ébullition cesse.

Microscope très haut vide. — Le choix fait, indiqué dans le paragraphe I, de placer le cryostat dans la colonne optique même du microscope, nous permet d'utiliser au mieux la capacité de pompage des surfaces refroidies à 4 °K. Nous avons tenu d'ailleurs à obtenir un vide limite très faible et, surtout, un vide propre. Les pompes primaires utilisées sont deux cryopompes à zéolithe et le pompage secondaire est fait par une pompe ionique Riber de 400 l/s. Avant tout refroidissement la pression limite atteinte dans toute la colonne est 3×10^{-7} torr. Ceci est rendu possible grâce aux soins apportés dans la construction des éléments mécaniques. En particulier tous les déplacements sous vide sont transmis de l'extérieur par des commandes faites avec des tubes à membrane flexible (calorstat) que ce soient : les déplacements de l'objet, ceux des diaphragmes (*), ceux nécessaires au changement d'objet par le sas, ceux aussi permettant de translater les carcasses ferromagnétiques des lentilles pour le centrage de la colonne optique. On peut remarquer que l'usage des soufflets pour ces transmissions permet non seulement d'assurer une excellente étanchéité mais aussi de laisser dans l'atmosphère toutes les parties mécaniques délicates des commandes avec les avantages que cela comprend pour la réalisation et l'entretien (graisse, roulements à bille, etc...). Une fois le cryostat refroidi, le vide limite s'établit à 2×10^{-8} torr quand la chambre photographique est fermée et à 5×10^{-8} torr quand elle est ouverte sur la colonne. Dans ce domaine de pression résiduelle la contamination est inexistante et il n'est pas possible de voir une trace quelconque de contamination même sur des objets laissés plusieurs heures sous le bombardement électronique [6].

Conclusion. — Le but que nous nous étions fixé était de montrer qu'il était possible de réaliser un microscope ayant toutes ses lentilles supraconductrices, étant donné l'intérêt que présentent ces lentilles en microscopie à très très haute tension. La solution que nous présentons montre que de tels microscopes sont non seulement très concevables mais que leur fonctionnement n'est pratiquement pas plus délicat que celui des microscopes de type classique. Les objets

(*) Le porte-diaphragme objectif est décrit dans la Thèse d'université de M. Jean-Claude Homo.

observables peuvent être aussi bien à la température ordinaire ou à une température supérieure ou inférieure (la carcasse en fer de l'objectif entoure en effet l'objet comme dans un microscope classique). Les problèmes de stabilité mécanique de l'ensemble qui, *a priori*, pouvaient être considérés comme redoutables, semblent bien résolus. D'autre part, la dépense en hélium liquide n'est pas excessive et un liquéfacteur de très faible puissance doit suffire au bon fonctionnement.

Il est aussi important de faire remarquer que le cryostat présenté, avec les bobines actuellement dans le réservoir, pourrait tout aussi bien servir pour un

microscope électronique 750 kV ou même 1 000 kV. Cette dernière valeur n'est d'ailleurs pas une limite absolue et des cryostats du même type sont tout à fait concevables pour des microscopes de beaucoup plus haute tension.

Remerciements. — La description d'un tel appareil et la présentation des résultats relatifs à son bon fonctionnement ne peuvent se terminer que par un hommage aux qualités professionnelles des techniciens qui l'ont construit. Nous remercions tout particulièrement le chef d'atelier M. Depautex, le tourneur-soudeur M. Poree et le fraiseur M. Crasson.

Bibliographie

- [1] LABERRIGUE (A.), GENOTEL (D.), HOMO (J.-C.), LEVINSON (P.), SEVERIN (C.), TESTARD (O.), *Electron Microscopy*, Rome, 1968, I, 29.
 - [2] GENOTEL (D.), LABERRIGUE (A.), LEVINSON (P.), SEVERIN (C.), HOMO (J.-C.), GIRARD (M.), BALOSSIER (G.), *Microscopie Electronique*, Grenoble 1970, II, 93.
 - [3] GENOTEL (D.), BALOSSIER (G.), SEVERIN (C.), GIRARD (M.), HOMO (J.-C.), LABERRIGUE (A.), *C. R. Acad. Sci.*, Paris, 1971, 272, 1461.
 - [4] LABERRIGUE (A.), LEVINSON (P.), BERJOT (G.), BONHOMME (P.), *Annales univ. et ARERS*, 1967, V, 50.
 - [5] SEVERIN (C.), GENOTEL (D.), GIRARD (M.), LABERRIGUE (A.), *Microscope 400 kV à lentilles supraconductrices. 2 : Caractéristiques électro-optiques et fonctionnement*.
 - [6] BALOSSIER (G.), GENOTEL (D.), SEVERIN (C.), *Communication privée*.
-