

1 はじめに

微細な形態観察や分析に欠かせない電子顕微鏡。現 在はいろいろな方式のものが存在するが、一般的な透 過電子顕微鏡において観察に使用する電子ビームのエ ネルギーは100 keV~300 keV である。しかし、できる だけ厚い試料(とはいえ試料の薄片化は必要)を観察 するために、エネルギーが1 MeV~3 MeV という超高 圧電子顕微鏡と呼ばれるものがある。また、透過電子 顕微鏡を応用した計測手法である電子線ホログラ フィー法¹¹などを用いれば、材料内部の電磁場を電子顕 微鏡の分解能レベルで計測し、その量子現象を解明す ることもできる。電子線ホログラフィー法は1948 年に ガボールが発明し1978年¹⁾に外村が実用的な装置を開 発した。今回取り上げる1.2 MeVの原子分解能・ホロ グラフィー電子顕微鏡は、電子線ホログラフィー法に 最適化された超高圧電子顕微鏡であり、内閣府最先端 研究開発支援プログラムの助成により2014年に完成し た。原子レベルの分解能で材料内部の電磁場を計測す ることを第一の目標としており、磁石、超伝導材、磁 性薄膜応用デバイスなどの開発や量子力学の基礎研究 などに活用されている。

2 装置の概要と技術課題

原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡とは名称の とおり,原子レベルの分解能で電磁場を計測しようと



高い安定性を確保するため、高圧電源を電子顕微鏡本体から分離した3タンク方式の1.2 MV の超高圧電子顕微鏡。

図1 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の概要

Atomic Resolution Holography Electron Microscope.

する装置である。高性能の透過電子顕微鏡ならば原子 の配列をとらえることができるが、原子レベルの分解 能で電磁場を計測することはできていなかった。そこ で、透過電子顕微鏡として世界最高の点分解能を実現 するとともに、電磁場を原子レベルの分解能で計測で きる世界で最初の装置を目指した。装置の概要は図1 に示すとおり、1.2 MV 高電圧発生回路、電子銃制御電 源、そして電子銃と加速管が収められた三個のタンク を備えている。これらの機器には -1.2 MV の高電圧が 印加されるため、放電抑制ガスである SF₆を充填した タンク内に収められている。また、高圧電源から発生 するノイズの影響を抑えるため電子顕微鏡本体から離 し、高電圧ケーブルで繋ぐ構造とした。この装置の開 発においては、主に分解能を大幅に向上させるために 以下の四つの課題に取り組んだ。

2・1 球面収差補正器を世界で初めて超高圧電子顕微 鏡に搭載

光学顕微鏡では凸レンズと凹レンズを組み合わせて レンズの収差を補正している。電子顕微鏡に用いる電 子レンズも同様だが、凹レンズの機能を精度よく実現 できるようになって収差補正が実用化されたのは 1990 年代なかばだった²⁾。しかも、その性能を引き出すに は、搭載される電子顕微鏡本体に高い安定性が求めら れるため、大型の超高圧電子顕微鏡には開発着手時 (2010年)には搭載されたことがなかった(2019年5 月時点でも本装置のみ)。そこで以下の技術課題を解決 して装置安定性を大幅に高め、超高圧電子顕微鏡に世 界で初めて球面収差補正器を搭載することになった。

2・2 エネルギーのばらつきを抑えた 1.2 MeV の電 子ビーム

電子ビームのエネルギーがばらつくと球面収差補正 器を備えていても分解能は劣化する。したがって電子 ビームを非常に安定した電圧で加速することが不可欠 である。目標とした分解能を得るには、1.2 MeV の高 いエネルギーで、そのばらつきを0.6 eV 未満に抑えた 電子ビームが必要であった。電子ビームを加速する電 圧の安定度を高めるため、ノイズが少なくかつ温度係 数の小さい抵抗器やフィルタ機能を有する高電圧ケー ブルなどを開発し、それまでの最高の装置の安定度を 約70%上回る安定度 3×10⁻⁷ の1.2 MV 超高圧電源シ ステムを開発することになった。

2・3 電子ビームを長時間安定して放出する電子銃

電子線ホログラフィーに適した干渉性の高い電子 ビームを引き出すことができる電界放出電子銃は,清 浄な金属針先端に高い電圧(引出電圧)をかけて電子 を放出させる。ところが真空中の残留ガスが金属針先



高い遮音性と低雑音性能:20 dB 以下 (>200 Hz) 床振動の低 減: 7.2×20^{-4} cm/sec² (100 Hz) 顕微鏡周りの温度変化 (室 温): ±0.2℃/8 hr

図2 低ノイズで安定な環境を確保する電子顕微鏡専用建屋

端に吸着することで放出電子電流は徐々に減少して いってしまう。そのため一日に1~2回は引出電圧を調 整しながら使用する必要があった。しかし,引出電圧 を調整するたびに電子ビームの光軸がわずかだが変化 して球面収差補正器を最適な条件で動作させることに 支障が生じるおそれがあった。そこで一日の観察の 間,放出電子電流が減少しないように真空度を約3× 10⁻¹⁰パスカルまで向上させた電子銃の開発に取り組ん だ³⁾。

2・4 分解能の劣化要因を排除する設備技術の開発

原子分解能の観察を行うためには、電子ビームや観 察する試料に対する振動、音響、磁場などの外部から の乱れ要因を極限まで抑える必要がある。これらを抑 制するために、固い地盤に基礎を置き、吸音性と断熱 性の高い専用建屋を建設した。その結果、高い遮音性 と低雑音性:20 dB以下(>200 Hz)、床振動:7.2× 10^{-4} cm/sec² (@100 Hz)、室温変化:±0.2 °C/8 hr を 達成した(図 2)。

3 開発上の主な技術的トラブル

前章で述べた四つの技術課題は、要素技術としては 開発済み、またはそのめどが立っていると考えたもの ばかりであった。しかし、それらを組み合わせて一つ のシステムを構築する過程では多くの予期せぬトラブ ルに見舞われ、その対策に苦労した。ここではそのう ち特に苦労した三つの事象について触れることにする。

3・1 高電圧ケーブルの耐電圧不良

新たに設計製作した -1.2 MV 高電圧電源や高電圧 ケーブルを専用建屋に設置し, -1.2 MV の印加テスト を実施したが -900 kV でケーブル端部の絶縁体の根元



先端部はマイナスの高電圧が印加さ れ、根元部分はグランドである。ケ ーブル先端に高電圧を印加する試験 を行ったところ、所定の電圧 1.2 MV に達する前に放電が発生し、樹脂の 表面に放電痕が残った。

図3 高電圧ケーブルのケーブル端部で放電が発生

部分で放電(耐電圧不良)が複数回続けて起きてしまっ た(図3)。工場出荷前にケーブル単体で-1.3 MVの 電圧印加試験をパスしていたにもかかわらずであっ た。仮説を立てては検証実験を繰り返したが放電原因 究明にはなかなか至らなかった。たとえば、電圧印加 後定常状態に落ち着くまでの電荷の動的挙動を新たに 取り入れたシミュレータで電場を再計算したところ、 定常状態ではほとんどゼロ電場となる絶縁体の根元部 分にそれなりに高い電場が発生するタイミングがある ことが分かった。これが原因かと思ったが、それだけ で放電を引き起こすような強度ではなかった。そのよ うな状況で行き詰まった結果、決定的な要因一つでは なく複合要因だと考えて検討を進めることにした。設 計上はなめらかな個所に実際はバリがある場合や空気 だまりができていて真空排気が不十分な場所があった らどうなるかなど理想状態からの乖離を仮定して計算 した結果、放電が起こりうるという結論を得た。それ を受けて、問題部位の電場上昇を強制的に抑え込む電 極を新設したところその後放電は一切発生しなくなっ た。これまでの超高圧電子顕微鏡の高電圧ケーブルで も同じような電場上昇は起きていたはずなのだが、そ の際は運良く他の要因の程度が小さかったのだと結論 付けた。

3・2 高電圧用抵抗モジュールの微小放電

1.2 MV の高電圧が印加できるようになったのでその 安定度を計測したところ、微小なパルス状のノイズが のっていた。規則性がないことから高電圧部の何らか の微小放電が疑われた。タンクを開放して内部の多数 の部品をよく観察したところ、高電圧制御用のフィー ドバック回路に用いられている多くの抵抗モジュール のいくつかが異様に膨らんでいるのを発見した。温度 係数とノイズが非常に小さい特殊な抵抗を数個直列に してモールドしたものであり、使用時にはモジュール の端子間に十数 kV がかかる。モールドする際に固化し た樹脂から受ける応力で抵抗の特性が変化することを 避けるため、モールド材としてシリコーンゴムを採用 したのが災いしたのだった。気体が通過できるシリ コーンゴムを高気圧のSF6ガス環境下で使用したた め、ガスがシリコーンゴム内部に浸透し亀裂や空孔が 発生し、大気圧下に取り出すと内部にたまった高圧ガ スにより膨らみを生じるということが分かった。この ような空孔があると電圧のバランスが崩れて微小な放 電が発生するということは高電圧モジュールの世界で は常識であった(部分放電)。そこで、シリコーンゴム を用いたままでボイドの発生を防止しようとしたが困 難だった。結局、エポキシ樹脂モールドという成熟し た技術を採用し、硬化した際に埋め込んだ抵抗器にか かる応力と性能変化との相関を実験で求め、抵抗器の 形状や被覆材に工夫を凝らして性能を満足することが できた。こうしてようやくモジュール約100個が揃 い、それらを組み込んで安定な高電圧印加を実現でき た。3・1の高電圧ケーブルの放電発生からこの問題が解 決するまでに1年以上が経過していた。

3.3 加速管のエージング作業におけるハプニング

電子を1.2 MeV に加速するため44 段の電極と碍子 からなる円筒状の大型部品があり加速管と呼んでい る。最上段 -1.2 MV, 最下段 0 V で, 各段 30 kV 程度 が印加される。この部品は、構造が完成してもその後 エージング作業を行わないと電極と碍子の接合部の微 小突起や残留ガスなどにより各段20kV すら印加でき ない。エージングは、内側にヒーターを備えた巨大な チャンバーをかぶせてベーキングにより脱ガスを行 い、その後各段に数十kVの電圧をかけて小さな放電を 故意に発生させて小突起を丸める作業である。これ を,所望の耐電圧性能が得られるまで必要に応じて繰 り返し行う。ほぼ所望の性能が得られるようになった が、念のためもう一回ベーキングを行おうということ でそれまでよりやや高めの温度でベーキングしたとこ ろ、加速管の碍子の外部(非真空部)が褐色に変色し てしまうというショッキングなトラブルに見舞われ た。変色原因は分析の結果、金属銅と塩化銅の付着で

あった。碍子表面を薄く削り洗浄してエージングをや り直すか、汚れを気にせずそのまま突っ走るか、耐電 圧性能が明らかには劣化していなかっただけに瀬戸際 の判断だったが後悔はしたくないので原因究明と対策 を決断した。社内の材料や分析技術関係者の協力によ り, 塩素混入原因探索, 銅付着メカニズムの解明と防 止策を立てた。なんと汚染原因は、ベーキング用チャ ンバー内へのヒーター取り付け作業で使用した塩素成 分をわずかに含む作業用手袋が、作業の際に針金に触 れて破れ、その破片のごく一部がヒーター部に残存し たままベーキングしてしまったからであった。炭化し た数ミリ角の微小な破片を発見、成分分析できたこと から奇跡的に判明した。並行して加速管の再生処理・ 洗浄を行い、2か月程度で電圧を安定に印加することが できた。これにより晴れて2・2で述べた課題である安 定度 3×10⁻⁷(0.3 ppm)の1.2 MV 超高圧電源システ ムが完成した。

4 目標分解能への挑戦

2014年3月には1.2 MeVの電子ビームで電子顕微鏡 像を出せるところまできた。次は世界最高分解能への 挑戦であった。高電圧の安定度、装置設置環境、電子 ビームの安定性、収差補正器の動作などは個別に確認 できており、40 pm 台の分解能が達成できるはずで あった。しかし、50 pm 台まできたところでステージ の静止性能、電気的な外乱ノイズ、試料ダメージなど によって進歩しなくなってしまった。その中でも特に 試料ダメージは深刻だった。原子一個レベルの分解能 を実証するため数原子の厚さしかない部分を観察して いたので観察中にその構造が壊れてしまうのである。 各種の工夫を凝らして実験を繰り返した結果、ようや く 11 月に 44 pm の Ga 原子の間隙を観察することに成 功した(図4)。さらに、タングステン単結晶を用いて 別の方法でも分解能を検証し、より良好な43 pmの格 子間隔を捉えることができた。この結果を論文発表し 分解能世界一(当時)として認められるに至った4)。顕 微鏡の分解能記録更新というわかりやすい目標を掲げ て進めてきた開発はこれでとりあえず一段落したもの の、実はホログラフィー電子顕微鏡として究極の性能 を実現するにはもう一つ重要な課題をクリアしなけれ ばならなかった。それが電子ビームの干渉性である。

5 電子ビームの干渉性と輝度

電子の波長が短く(=エネルギーが高く),かつそれ が揃っていて(=加速電圧の安定性が高く),そして軌 道のばらつきが小さいほど電子ビームの干渉性は高く なる。また,外部からの電磁的なノイズで電子がふら つけば軌道がばらついて干渉性は低下してしまう。原 子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡では,1.2 MeV (a)
電子顕微鏡像
シミュレーション像







図4 窒化ガリウム(GaN)のGa原子間隔を確認

とエネルギーが高いので電子の波長は短く、電子を加 速するための電圧の安定度は前述のように目標の0.3 ppm を達成していた。残る課題は外部からの電磁ノイ ズ混入の抑制であった。これらのノイズが電子銃の直 下にある偏向コイルにわずかではあるが混入していた のである。これらの原因の特定と侵入経路の探索を 行った。微弱なノイズは日や時間によっても変動する ため苦労したが、主に周囲の電気設備の動作により アース電位が変動することから混入するものであるこ とを突き止め、電磁シールドやフィルタのノウハウを 駆使してそれらを徹底的に抑制した。その結果、電子 の進行方向に対するばらつきを角度で表した開き半角 という指標において,実用的な条件における最小値と して 4.0×10⁻⁹ rad と非常に良好な値が得られ,干渉性 の高い電子ビームを得ることができた5)。この干渉性と 関連する電子ビームの指向性および電子電流密度を合 わせた電子顕微鏡の性能指標が輝度(brightness)であ り、電子顕微鏡における世界最高輝度 3×10¹⁴ A/m²sr も確認できた5)。輝度が向上すると多くの電子を短時間 に照射することができる。また、高い干渉性と高い輝 度は基礎科学の分野でも有用である。たとえば、電子

ぶんせき 2019 9

が粒子でありながら波動でもある二重性をより深く理 解するための量子物理学の基礎的研究を深化する取り 組みも行っている⁶⁾。

6 材料内部の磁場分布を原子分解能で計測

この電子顕微鏡の主な目的は冒頭で述べたように材 料内部の電磁場を原子レベルの分解能で計測すること である。球面収差補正器を備えた電子顕微鏡ではレン ズの球面収差が補正されるため、強い磁場を発生する 対物レンズから離れた位置に観察対象試料を置いても 球面収差は分解能に影響しない。また、電子のエネル ギーが高く,電源の安定性も高いことから色収差も大 きくない。それにより、レンズから離れた無磁場の位 置に試料を置いた場合でも、0.235 nm という高い分解 能を確認できている。レンズから離れた位置に試料を 置けるというメリットは、試料の周囲に大きな空間を 確保することができ、試料に任意の電場や磁場を印加 したり加熱したり力を加えたりしながら観察するため の機構を配備できるということである。たとえば材料 の磁化状態を超高分解能で観察する場合を考えてみ る。電子顕微鏡の中に挿入した試料に、極性の異なる 高強度パルス磁場を交互に加えて、材料の磁化方向を 反転させる機構があると,磁化反転前後の観察結果の 差分から高精度に試料の磁場情報のみを取り出すこと ができる。この技術を取り入れることで磁性多層薄膜 内部の磁場分布を 0.67 nm というこれまでにない高い 分解能で高感度に観察することができた(図5)⁷⁾。

7 おわりに

前例がない一品ものである本装置の開発において は、確立された要素技術の組み合わせのように見えて も、すんなりとはいかないということを痛感させられ た。要素技術開発において、数例を検証してうまく いっていたとしてもそれは単に運が良かっただけとい う当たり前のことでもある。このプロジェクトでは技 術面以外の試練も多数あり大変な開発であったが、周 囲の理解と支援、そしてプロジェクトメンバーの執念 で完成にこぎつけることができた。関係者の皆様に改 めて深く感謝する次第である。この電子顕微鏡は利用 希望者に広く門戸を開いている⁸⁾。多くの研究者に活用 いただくことで、磁石、電池、超伝導材などの高機能 材料の機能・特性を生み出している量子現象を解明 し、画期的な先端機能性材料の研究開発と、基礎科学 の発展に貢献していきたい。



図 5 磁性多層膜内部の磁場分布を 0.67 nm の世界最高分解能 で観察した結果

文 献

- A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo : *Jpn. J. Appl. Phys.*, 18, 9 (1979).
- M. Haider, G. Braunshausen, E. Schwan : Optik, 99, 167 (1995).
- K. Kasuya, T. Kawasaki, Noboru M. Makoto Arai, T. Furutsu: J. Vac. Sci. Technol., B32 (3), 031802 (2014).
- T. Akashi, Y. Takahashi, T. Tanigaki, T. Shimakura, T. Kawasaki, T. Furutsu, H. Shinada, H. Muller, M. Haider, N. Osakabe, A. Tonomura : *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 074101 (2015).
- T. Akashi, Y. Takahashi, K. Harada, T. Onai, Y. Ono, H. Shinada, Y. Murakami : *Microscopy*, 67 (5), 286 (2018).
- K. Harada, T. Akashi, K. Niitsu, K. Shimada, Y. Ono, D. Shindo, H. Shinada, S. Mori : *Scientific Reports*, 8, 1008 (2018).
- 7) T. Tanigaki, T. Akashi, A. Sugawara, K. Miura, J. Hayakawa, K. Niitsu, T. Sato, X. Yu, Y. Tomioka, K. Harada, D. Shindo, Y. Tokura, H. Shinada: *Scientific Reports*, 7, 16598 (2017).
- アトミックスケール電磁場解析プラットフォーム HP, https://www9.hitachi.co.jp/atomicscale_pf/(2019年5月 24日,最終確認).



品田博之(Hiroyuki SHINADA) (㈱日立製作所研究開発グループ基礎研究セ ンタ(〒350-0395 埼玉県比企郡鳩山町赤 沼 2520)。大阪大学大学院情報科学研究科 修了。工学博士。≪現在の研究テーマ≫電 子線装置及び超高圧ホログラフィー電子顕 微鏡に関する研究。≪趣味≫楽器演奏およ び音楽鑑賞。

E-mail: hiroyuki.shinada.av@hitachi.com