

原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発

—数々の困難を乗り越えて—

品田 博之 Shinada Hiroyuki

2010年3月から本格的に開発を開始した原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡が、このたび世界最高分解能を実現し、開発を完了した。この装置の開発提案に至るまでの歴史、最先端研究開発支援プログラムの助成を受けた開発の経緯、装置の特徴および今後の活用について述べる。実質上の開発リーダーであったエンジニアの開発開始早々の病没、東日本大震災、そして提案者であり中心研究者である外村博士の逝去といった予期しなかった不幸と困難、さらに高電圧に関わる技術的なトラブルを克服し、2014年12月に43 pmの世界最高分解能を確認するに至った。今後はこの装置を用いて、オープンイノベーションによって新機能性材料の開発を加速していきたい。

1. はじめに

電子ビームを観察対象試料に一括照射し、透過した電子が作る試料の像をレンズで拡大する電子顕微鏡は、1932年にドイツで発明された。日本では1939年にその開発と応用研究が始まり、日立初の電子顕微鏡HU-1型を開発した1941年以後、世界中で多くの企業が開発を競った。日立は、1942年に国産商用第一号機HU-2型を名古屋帝国大学（当時）へ納入した¹⁾。1958年のブリュッセル万国博覧会では、日立が出展した電子顕微鏡がグランプリを受賞し²⁾、その後も日立製を含む日本の電子顕微鏡は世界トップを競ってきた³⁾。

一方、1965年には電子ビームを一点に絞って試料の表面を走査する走査電子顕微鏡（SEM：Scanning Electron Microscope）が商用化された。その頃の電子顕微鏡は、タングステンを熱することで放出される熱電子を電子源とした熱電子銃を用いていた。鋭くとがらせた金属に強い電場を印加してトンネル効果で電子を取り出す電界放出という現象は知られていたが、それを活用するには高い真空度が必要であり、取り扱いが難しいため実用化されていなかった。日立は、シカゴ大学のクレュー（Albert V. Crewe）教授の指導を受けてこの電子源およびこの電子源を搭載した電子銃を実用化し、これを走査電子顕微鏡に搭載し、1972年に商用化した。これらの技術は、半導体パターン計測専用の測長SEMとして1984年以降大きな事業となり、現在も世界トップシェアを維持している⁴⁾。

話を透過電子顕微鏡に戻す。電子ビームのエネルギーを増すと試料を透過する能力が高くなり、より厚い試料でも観察できるようになるため、当初は100 keVだったエネルギーが1966年には10倍の1 MeV^{5), 6)}となり、さらには3 MeVにまで達する超大型のものまで開発された^{7), 8)}。電子顕微鏡の歴史を語れば長くなってしまふ。また、それを

語る論文や読み物は多く存在するので、ここでは早速ホログラフィー電子顕微鏡の説明に移る。

2. 外村とホログラフィー電子顕微鏡

2.1 ホログラフィー電子顕微鏡の黎明期

ホログラフィーと聞くと、偽造防止のためにクレジットカードや紙幣などに作り込まれたものを思い浮かべる人も多いであろう。しかし、この技術はもともとガボール（Gábor Dénes）により、電子顕微鏡の分解能を向上させる方法として1948年に発明されたものである⁹⁾。当時の電子銃は熱電子銃であり、輝度は低くかつ干渉性のよくない電子ビームしか取り出せなかったために実用化は先送りされた。一方で、1960年にレーザー光が発明されると光の世界で一躍脚光を浴び、現在のように白色光下で観察できるホログラム（ホログラフィー技術で焼き付けられた三次元情報を持った写真）が実用化された。そのような中、電子顕微鏡におけるホログラフィーの研究は地道に続けられ、日立の外村彰も1968年ごろからこの研究に携わっていた。電子線ホログラフィーを実用化するためには高輝度かつ光源が小さく干渉性の高い電子ビームが必要であり、それを満たすのがまさに日立で1972年に実用化に成功した前述の電界放出形電子銃であった。この電子銃は走査電子顕微鏡の分解能を飛躍的に向上させて一気に普及したが、透過電子顕微鏡にはすぐには搭載されなかった。外村は電界放出電子の干渉性の高さに着目し、これを透過電子顕微鏡に搭載して1978年に初めて実用的なホログラフィー電子顕微鏡を開発した^{10), 11)}。

2.2 電子線ホログラフィー

ここで電子線ホログラフィーの原理について説明し、外

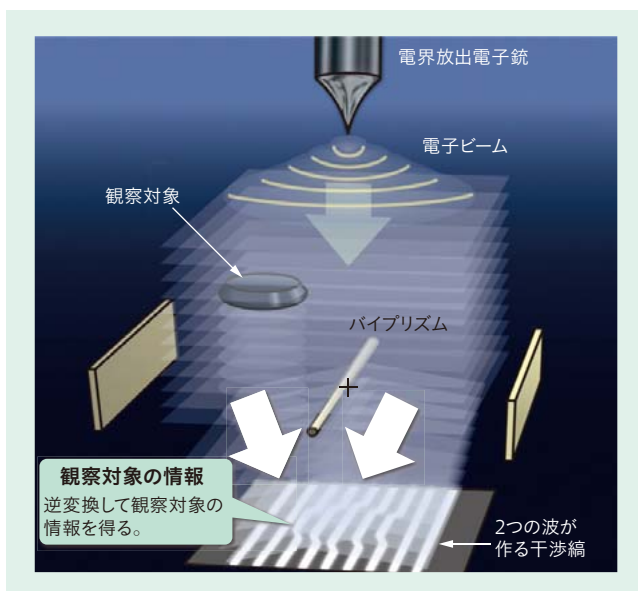


図1 | ホログラフィー電子顕微鏡の原理

金属先端から放出される輝度が高く干渉性のよい電界放出電子が作る干渉縞から観察対象の電磁場の情報を得る。

村らの代表的な成果を紹介する。

電界放出電子銃から放出した電子ビームの片側のみを試料に透過させ、その後の光路の中心にパイブリズムと呼ぶプラスの電位を与えた導電性の細線（直径1 μm 以下）を配置する。試料を透過し、試料情報を反映して位相が変化した電子ビームと、試料のない真空領域を透過した電子ビームが検出器上（蛍光板や撮像素子）で干渉縞（じま）を形成する。試料がなければこの干渉縞は乱れのない縞模様となるが、試料の存在によって片側の電子ビームの位相が変化しているため試料の情報を反映した変化が生じる。この干渉縞（ホログラム）にレーザー光を当てると試料の情報、例えば試料の厚さ、電場や磁場の情報を再生できる。近年では画像をデジタル化し、計算機処理によって再生することができ（図1参照）。

この電子線ホログラフィーやそれに関連した各種手法により、磁気記録テープの記録磁場¹²⁾（図2参照）の観察、ベクトルポテンシャルの実在を実験検証したアハラノフ・ボーム効果の検証¹³⁾（図3参照）、超伝導体状態のニオブ

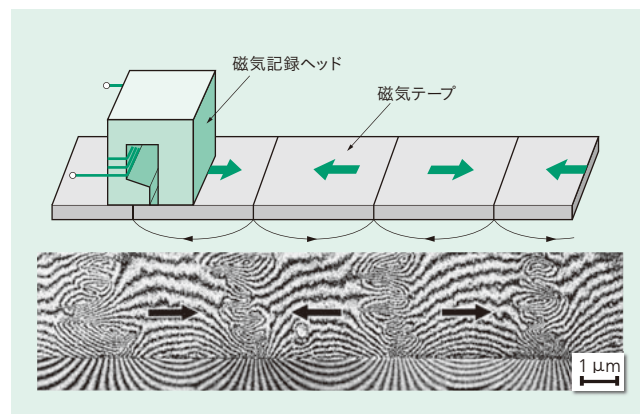


図2 | 磁気記録テープの記録磁場

磁気テープを観察した例を示す。テープ内部の磁化およびテープの外の磁場が鮮明に観察される。

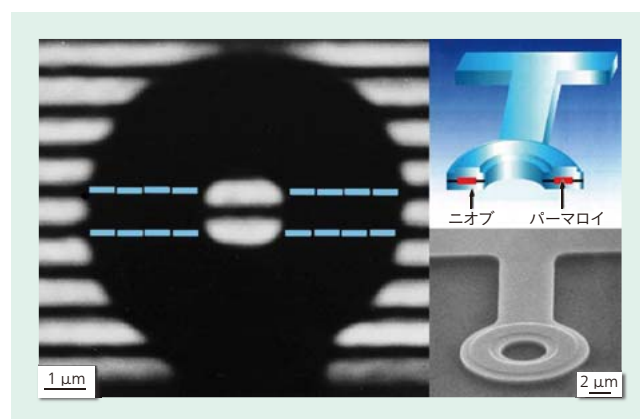


図3 | アハラノフ・ボーム効果の検証実験

強磁性体パーマロイをドーナツ状にしてニオブで囲み、低温でニオブを超伝導状態にすることでパーマロイから空間に磁場が漏れ出ないようにした。しかし、電子線の干渉縞すなわち位相はドーナツの中と外で変化していた。これは電磁ポテンシャルの一つであるベクトルポテンシャルが電子の位相を変化させたためであり、これによりアハラノフ・ボーム効果（電子のような電荷を持つ粒子が、電磁場のない空間において電磁ポテンシャルの影響を受ける現象）の実験実証がなされた。

から漏れ出る磁束量子（磁束の最小単位で約 2.0×10^{-15} Wb）の観察^{14), 15)}などを実現していった。また、電子ビームによる二重スリット実験¹⁶⁾では、二つのスリットを通過した電子線が、数が少ないうちは粒子として一つ一つの輝点として観察され、数が増えるにしたがって干渉縞となってくる様子を取得した（図4参照）。これは、電子の二重性（粒子性と波動性）を直感的に示す実験として「世

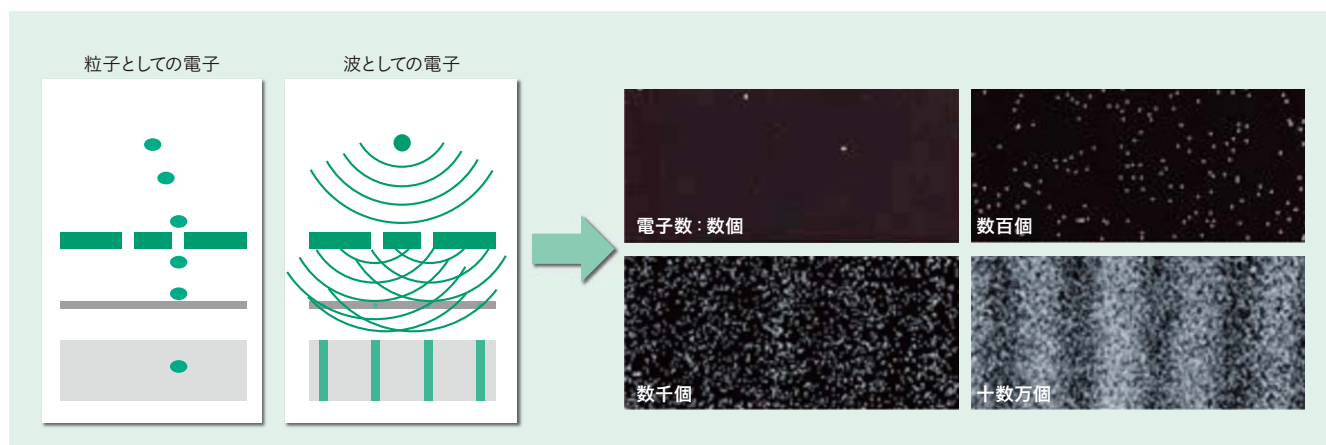


図4 | 電子二重スリット実験

一個一個の電子は粒子として観測されるが、多数集まると波としての性質である干渉縞が形成される。

界でもっとも美しい10の科学実験」¹⁷⁾の一つに取り上げられ、国内外の多くの物理学の教科書でも触れられている。

2.3 超高圧ホログラフィー電子顕微鏡の開発

2000年には、科学技術振興事業団（現 国立研究開発法人科学技術振興機構）の戦略的創造研究推進事業「電子波の位相と振幅の微細空間解像」の一環として、東京大学と共同で世界初の超高圧1 MVホログラフィー電子顕微鏡を開発し、120 pmの点分解能で微細領域での電磁場計測を可能にした¹⁸⁾。試料透過能力が高いという超高圧電子顕微鏡の特長を生かし、酸化物高温超伝導体の磁束量子の直接観測を実現するとともに、磁場を変化させたときに磁束量子が結晶欠陥の影響を受けながら移動する様子をダイナミックに捉えるなど、酸化物高温超伝導のメカニズム解明に大きな貢献を果たした¹⁹⁾。

3. 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発

1 MVホログラフィー電子顕微鏡の完成後、外村は究極のホログラフィー電子顕微鏡の構想を抱いた。電子顕微鏡のレンズが持つ球面収差を補正する収差補正器²⁰⁾（後述）

がすぐに実用化され、超高圧電子顕微鏡にこれを適用すれば飛躍的に分解能を向上できる見通しが立ったからである。しかし、収差補正器の性能を引き出すには、電子顕微鏡本体の安定性をそれまでの2倍以上向上させる必要があった。規模が大きく、かつ超高電圧を扱う超高圧電子顕微鏡でそのような困難な課題に取り組んだグループはそれまで世界になかった。外村はそれに取り組む、原子レベル（数十ピコメートル）で電磁場を観察できる「原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡」を実現しようと考えた。

ここで、外村と二人三脚で超高圧ホログラフィー電子顕微鏡の開発を進めてきたエンジニアの松井功に触れておかなければならない。日立の超高圧電子顕微鏡や、直近では超高圧1



外村彰（左）と松井功（右）

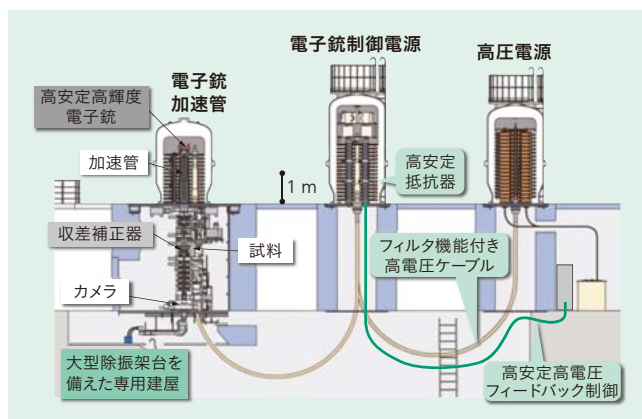


図5 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の概要

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超高圧電子顕微鏡の構造を示す。タンクの間は高電圧ケーブルで結ばれている。観察対象の電磁場の情報を得る。

1 MV ホログラフィー電子顕微鏡の開発リーダーであり、これらの装置の開発において絶大な存在感を持ったエンジニアであった。外村は松井と一緒に2003年からこの夢を実現すべく動きだした。目標性能は、世界最高の40 pm台(当時の世界最高は70 pm台)の分解能、電子線ホログラフィーによって電子の位相差を波長の1,000分の1まで検出できること、そして三次元の電磁場を計測できることであった。

3.1 解決すべき四大課題

原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡は、3個の高圧タンクと除振架台に乗った電子顕微鏡本体で構成される(図5参照)。右のタンクは高電圧1.2 MVを作り出す高電圧発生タンク、中央は電子銃の制御をする信号を作り出す電子銃制御電源、そして左のタンクには電子銃および、電子ビームを1.2 MeVに加速する、電極と碍子(がいし)が幾重にも積み重ねられた加速管が入っている。電子銃および加速管の中は、 10^{-9} Pa台またはそれより高い真空度に保つ。これらの機器にはマイナス1.2 MVの高電圧が印加されるため、空気中に露出していると放電してしまう。そこで、放電抑制ガスである SF_6 (六フッ化硫黄)を4気圧の圧力で充填(てん)したタンク内に収めている。また、高

圧電源は音や電氣的ノイズを発生するため電子顕微鏡から離して設置し、その間を高電圧ケーブルでつなぐ構造となる。電子顕微鏡の本体は、外部の振動の混入を抑止するために四隅をダンパーで支えた円筒状の除振架台に搭載される。基本構成は、2000年に完成した1 MV超高圧ホログラフィー電子顕微鏡¹⁸⁾とほぼ同じである。しかし、原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の目標性能を実現するためには、大きな課題が4つ存在した。同図にはそれらの課題の部位も示してある。それらについて説明する。

3.1.1 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ることでレンズの球面収差を補正し、焦点ぼけをなくしたうえで試料構造の拡大像を観察する。電子顕微鏡に用いる電子レンズでは、長い間凹レンズの機能を出すことができなかったため、球面収差によって分解能の向上が阻まれてきた。この球面収差を補正する装置は1995年には実用化した²⁰⁾、球面収差補正器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搭載できていなかった。そこで、以下の3.1.2～3.1.4各項に述べる技術を実現して装置の安定性を大幅に高めたうえで、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とした。

3.1.2 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焦点ぼけを生じてしまう。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。目標分解能を得るには、1.2 MeVの高いエネルギーを持ちながら、そのばらつきを0.54 eVに抑えた電子ビームを得ることが必要という試算がされた。そこで、電子ビームを加速するための電圧の安定度を高めるため、ノイズが少なくかつ温度変化に対して電気抵抗の変化が起こりにくい抵抗器、ノイズフィルタ機能を有する高電圧伝達用のケーブル、安定度の高い高電圧フィードバック制御回路な

どを開発し、従来装置の安定度を約70%上回る安定度 3×10^{-7} の1.2 MV超高压電源システムを開発することとした。

3.1.3 電子ビームを長時間安定して放出する電子銃

1 MVの超高压電子顕微鏡の電子銃をはじめそのほかの一般的な電界放出型電子銃は、電子を引き出すための電圧（引き出し電圧）を印加して電子放出を開始した直後から放出電子電流が減少する。そのため、1日に1~2回は電子の引き出し電圧を調整しながら使用する必要があった。しかし、引き出し電圧を調整するたびに電子ビームの軌道がわずかに変化するため、最適光軸条件で球面収差補正器を動作させることは容易ではない。1日の観察の間、球面収差補正器の条件を再調整することなく最良の性能を維持するには、10時間以上無調整で電子ビームを安定して放出できる電界放出電子銃が必要と考えた。加熱しながら電界で電子を引き出すショットキー型電子銃²¹⁾は非常に安定であるが、エネルギーのばらつきが電界放出電子より大きいので、ホログラフィー電子顕微鏡には不適當である。そこで、加熱せず電界のみで電子を引き出す電子銃で高い安定性の実現をめざした。それには、電子銃内部の電子が放出される部分の真空度を、従来比約100倍となる 3×10^{-10} Paという極高真空にすることが必要である。そこで、このような極高真空を実現する電子銃を開発することとした。

3.1.4 分解能の劣化要因を排除する設備技術の開発

原子レベル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。そのために、電子顕微鏡専用の頑強な建屋を建設し、音響に対しては建屋室内に吸音材を貼り付け、さらに室温変化の抑制にも取り組むことにした。高い遮音性と低雑音：20 dB以下(> 200 Hz)、床振動の低減： 7.2×10^{-4} cm/s² (100 Hz)、顕微鏡周りの温度変化(室温)： $\pm 2^\circ\text{C}/8$ hを目標とした。磁場に対しては、磁気シールドの機能を有するパーマロイで電子顕微鏡

装置の周囲を覆うこととした。

3.2 最先端研究開発支援プログラムへの提案と採択

外村の夢である原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の実現には、まず、四大課題を解決するための要素技術を地道に開発する必要があった。そこで、2006~2008年に実施された文部科学省科学技術試験研究委託事業「次世代の電子顕微鏡要素技術の開発」に参画し、それらの要素技術を開発した。その具体的な内容は、超高精度基準電圧源、ノイズフィルタ機能を備えた高電圧ケーブル、高安定低ノイズ抵抗モジュール、および高分解能結晶格子像評価技術である。特に高分解能結晶格子像評価技術²²⁾では、電子顕微鏡の分解能を劣化させる外部からのノイズ(振動や電磁場)の抑制と高次の結晶格子散乱波のみを結像に用いる暗視野法の適用により、外村チームが持っていた結晶格子縞最小観察記録49.8 pmを25.9 pmに更新した。ここで開発した技術のほとんどが今回の電子顕微鏡に盛り込まれている。なお、大きなトラブルを引き起こす要因も一つ含まれていたが、それについては3.4節で述べる。

外村は、この電子顕微鏡の開発に100億円規模の予算が必要であると考え、大規模な国家プロジェクトの提案に向けて各方面に働きかけていた。2009年、政府は日本の科学技術の強化のために、最先端研究開発支援プログラム(Funding Program for World-Leading Innovative R&D on Science and Technology：以下、「FIRST」と記す。)として、日本のトップ30名の研究者が一人当たり数十億円の予算を5年間自由に使える画期的な国家プロジェクト制度を構想し、研究者の人選を開始した。外村はこれに選ばれるべく奔走し、苦勞の末に90億円の予算で採択される見通しを得るまでに至った。ちょうどそのときに政権交代があり、このプロジェクトの予算もき程度に削られるのではないかと懸念が生じた。30億円では外村の望む装置はできるはずもなかった。しかし、多くの方々のご理解と、装置完成後の応用研究を外して装置開発に限定するという再計画により50億円でスタートできることになった。

並行して開発体制の準備が進められた。特に開発の本拠地をどこに置くかが大問題であった。それまでの電子顕微鏡は、すべて工場で組み立てて基本性能を確認した後に解体し、顧客先や社内の研究所で再組み立てしていた。しかし、今回は開発期間が限られていること、および顧客向けの製品ではないことから、埼玉県鳩山町にある日立製作所基礎研究所（当時）でねじ一個から購入して組み立てることを模索した。電子顕微鏡は数万点の部品で構成されており、同研究所で部品レベルからこれだけ大規模な装置を組み立てた経験はなかった。これを実現するために資材業務や経理業務の専従者を充てて鳩山在勤とした。また、株式会社日立ハイテクノロジーズ那珂工場（当時）で工務に携わった元従業員にも鳩山在勤を依頼した。機械加工を研究所内だけでこなすことは当然ながら不可能なので、鳩山の試作部門のベテランエンジニアと松井が日本中の精密加工業者を調査して協力の依頼をして回った。設計・開発・組み立て担当者としては、日立ハイテクノロジーズおよび株式会社日立ハイテクフィールドディングなどに、超高圧電子顕微鏡開発経験者を含む多くのエンジニアの出向や派遣での鳩山在勤を依頼した。もちろん、日立製作所中央研究所、日立研究所、生産技術研究所（いずれも当時）からも開発担当者を集め、最も多いときには30名を超えるチームが結成された。

3.3 次々と襲いかかる予期せぬ出来事

2010年3月、正式にプロジェクトがスタートした。まず、全体構想および製作に長期間かかる大型部品の設計、製作に取りかかった。同時に、電子顕微鏡を収める建物の建築準備もスタートした。このように当初の生みの苦しみを乗り越えてプロジェクトは順調に進み始めたかに見えた。しかし、想像もしなかった不幸が襲ってくる。今回のプロジェクト提案の立役者であり、日本を「超高圧電子顕微鏡王国」にしたエンジニアの一人である松井がスキルス性の胃がんに倒れたのである。そして、病気発覚から2か月足らずの2010年12月に急逝した。本開発にとって致命

的な出来事であった。残されたエンジニアは茫然自失の状態であり、二人三脚でプロジェクトを推進してきた外村が最もショックを受けたことは間違いなかった。しかし、そのような姿を一切見せず、プロジェクトメンバーを鼓舞してくれたおかげで、残されたメンバーは粛々と開発を続けていった。電子顕微鏡を収める専用建屋の建設は順調に進行し、その他の大型部品、高圧ケーブル、電子顕微鏡を搭載して外部振動を遮断する除振架台や、高電圧機器を収める高圧タンクなどの大型部品の設計と製作手配は、松井を引き継いだ設計者たちの努力によって進み始めた。一方で、電子顕微鏡自体の膨大な部品の設計や製作手配はなかなか進まなかった。

2011年3月、機械部品製作の工務担当者から製作図面がほとんど上がって来ないので機械加工業者に手配ができない、このままではとても期限までに完成できないとの悲鳴が上がった。3月11日、この困難を打開するための打ち合わせを開始しようとした矢先に、それまで経験したことのない揺れが我々を襲った。東日本大震災である。顕微鏡の建屋は、基礎のコンクリートを打設するところであった。人的被害や既存建屋の損傷がないことを確認した後、建築現場に駆け付けたところ、すでに作業場は復旧して全く浮足立ったようには見えなかった。そこにプロの意地を感じ、この建物に収める電子顕微鏡を何としても完成させねばならないと心に誓った。鳩山地区には目立った被害はなかったが、部品を製作している宮城県や茨城県の工場では大変なことになっていた。2006～2008年のプロジェクトで要素開発した技術を適用して完成間近であった高電圧ケーブルが、津波によって冠水して使いものにならなくなってしまったのである（図6参照）。高額長納期品の筆頭である直径12.5 cmの特殊な高電圧ケーブルを一から作り直すことは、予算と日程をゼロから組み直すことと同じであった。奇跡的にも予備のケーブルが冠水を逃れたため、日立電線株式会社（当時）の努力により、3か月程度の遅延で完成することができた。もう一つ、九死に一生を得たのが、この顕微鏡の心臓部の一つとも言える超高安定



冠水したケーブル



被災した工場

図6 | 完成直前で津波を受けた高電圧ケーブルと被災後の製造現場
日立港付近の海沿いの工場で製造されていた高電圧ケーブルが大津波を受けて使用できなくなってしまった。また、製造現場の建物の1階は水没し、水が引いたあともすぐには使用できない状況となった。

高圧電源やレンズ電源の製作を依頼していた電源メーカーである。このメーカーの本社工場は仙台空港の近くであり、仙台空港に津波が押し寄せたときの映像が連日のように放送されるのだが、あと少しのところまでその工場までは映らず、また通信手段も途絶していたため安否の確認ができなかった。数日後に、津波は工場の直前で奇跡的にも止まって、完成していた電源は無事であるとの連絡が入った。しかも、生活必需品やガソリンが不足する中で、ほぼ予定どおりに鳩山まで納品してくれるというのである。涙が出るほどありがたかった。納品後、宮城県に戻られる際

に被災した方々に向けた物資をわずかではあるが渡して見送った。その後、鳩山地区はしばらく計画停電でまともな勤務ができない状況ではあったが、本プロジェクトメンバーはほぼ毎日出勤し、できることを探して開発を続けた。もうこれ以上悪いことは起きないと誰もが信じていた。

しかし、さらにショッキングな出来事が3月16日に判明した。外村がすい臓がんであると診断されたのである。外村は気丈にもその直後に全プロジェクトメンバーに事実を伝え、治療後には必ず戻ってくると宣言した。メンバーはその言葉を信じ、開発を進めた。遅滞していた電子顕微鏡本体の設計も、各人の努力と進捗管理の徹底、不足人員の増強などによって進むようになっていった。

次節では完成に至るまでの経過について時系列で述べていきたい。

3.4 開発の経緯—多くの困難を克服—

3.4.1 高電圧ケーブル

2011年8月末、建屋が当初の計画どおりに竣工した（[図7](#)参照）。この建屋の床振動、音響ノイズ、そして温度変化はいずれも目標値をクリアし、必要な低ノイズ環境を構築することができた。温度変化に関しては、目標を一桁上

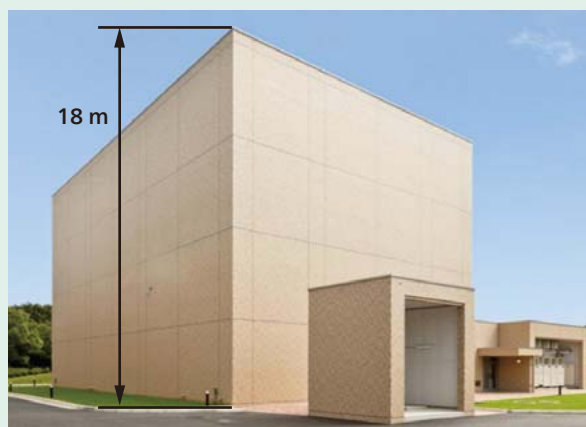


図7 | 低ノイズで安定な環境を確保する電子顕微鏡専用建屋
高い遮音性と低雑音性能：20 dB以下（>200 Hz）、床振動の低減： 7.2×10^{-4} cm/s²（100 Hz）、顕微鏡周りの温度変化（室温）： $\pm 0.2^\circ\text{C}/8\text{ h}$ を実現した。



図8 | 高電圧ケーブルのケーブル端部で放電が発生

先端部はマイナスの高電圧が印加され、根元部分はグラウンドである。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。

回る $\pm 0.2^{\circ}\text{C}/8\text{ h}$ という結果が得られた²³⁾。その後、大型部品の搬入が着々と進み、2012年の新年にはあたかも完成したかのような外観を示すに至った。津波被害で再製作となった高電圧ケーブルも3か月程度の遅延で搬入・設置され、1.2 MVの高電圧の印加テストを2012年1月31日と2月7日に実施した。ところが、900 kVと600 kVで放電を起こして電圧がかからない（図8参照）。性能検証の第一歩で大きなトラブルに見舞われてしまった。このケーブルは、工場出荷前に1.3 MVの電圧印加試験をパスしていたので、こんなに低い電圧で2回も放電してしまうとは予想もしておらず、ショックは大きかった。放電の原因を異物の存在とする説は強かったが、細心の注意を払って組み立てており、これ以上の異物対策は非現実的であった。現状の作業環境と組み立て方法で残るような異物が仮にあっても電圧がかからなければならなかった。早急に日立グループ内の高電圧有識者とケーブルの製造部門（日立電線）が合同で対策チームを作り、シミュレーションと評価実験を繰り返した。異物の影響を電場シミュレーションで評価した結果、見落とすことは考えられない10 mm程度の大きな金属異物でなければ耐電圧は劣化しないことが分かった。また、津波被害から復旧した製造現場で製作したことから絶縁体への塩分の混入を疑い、故意に塩水を吹き

かけた部品を試作して絶縁性能を計測したが、海辺の塩分程度では特性変化は全く認められなかった。研究所のOBの指導も仰いで検討を重ねた結果、時間的変化を考慮した動的なシミュレーションにおいて電場がほとんどゼロであるとみなされていた場所に、数十倍の電場が発生するタイミングがあることが分かった。電圧印加後数分から数時間というオーダーで一時的に一部の電場が上昇するというのである。設計時の静的なシミュレーションでは見逃されていた現象であった。それでも計算された電場強度は放電開始電圧には達していなかった。確かに、ケーブル製造工場での電圧印加試験では放電しなかったことも多々あったのでそれと合致する。そこで、電場上昇だけでは放電は発生せず、ほかに複数の要因が重なって発生するのであらうと考えた。そのうちの一つは微小な異物であり、もう一つは部品の接触部に残存する空気であらうという結論を得た。微小異物はゼロにはできないし、残存空気もゼロにはできない。しかし放電を抑えるには、とにかく問題となる部位の電場が上昇しなければよいわけであるから、それを抑える電極を新設することにした。対策が完了して耐電圧試験をクリアしたときには2012年7月を過ぎていた。その後は一度もケーブル起因の放電は発生していない。

3.4.2 外村の逝去

2011年4月に手術を受けた外村は、その半年後には研究所に出てこられるところまでに一時回復した。2012年5月には、世界中からそうそうたる物理学者や顕微鏡の研究者を招いたシンポジウムを計画しており、主催者として参加できることを皆が願っていた。しかし、2012年4月にプロジェクトメンバーの前に姿を現したのを最後に、シンポジウム直前の2012年5月2日に帰らぬ人となってしまった。当時、開発チームは高電圧ケーブル放電対策に注力しており、その報を聞いたのも日立電線で行われていた放電対策会議中であつた。一同大変に動揺したことは確かだが、外村の意向で開発に従事するメンバー全員に病状がほぼ隠さずに伝えられており、覚悟はできていたため開発

が止まることはなかった。また、シンポジウムは予定どおり開催され、生前に収録したビデオメッセージが流された。中心研究者の逝去によって誰がプロジェクトを引き継ぐかが問題となり、プロジェクトの存続が危ぶまれることになった。これに対して、研究者時代に外村グループで顕著な成果を多数挙げ、2012年当時は中央研究所所長であった長我部信行が中心研究者代行となり、装置を予定どおり完成させられることを最先端研究開発支援推進会議の方々に説明して理解いただき存続できることとなった。

3.4.3 高電圧抵抗モジュール

高電圧ケーブルの問題が一段落したとたん、次なる問題が発生した。2012年7月末に1.2 MVの電圧がかけられるようになったのでその安定度を計測したところ、微小な放電のようなノイズが発生していることが分かったのである。ノイズの原因を究明するために、巨大なタンクを何度も開け閉めしてテストを繰り返した。タンク内部の部品を観察したところ、高電圧の安定性を維持したり、電圧を計測して高電圧制御装置にフィードバックしたりするために用いられている100個近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。この抵抗モジュールは、3.1節で説明したとおり、高電圧の安定性を向上するために、本プロジェクトの前に開発が完了していたものである。その特徴は、抵抗温度係数(温度変化に対する抵抗値の変化) $\pm 2 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$ 、電流性ノイズ $< 0.3 \text{ ppm/min}$ という高性能なものであった。この抵抗モジュールでよかれと思って採用したモールド材のシリコンゴムが犯人であった。シリコンゴムは多孔質であり、気体を通しやすい。これらの部品はすべて4気圧の高圧の SF_6 ガス中に置かれているために、このガスがシリコンゴムを通して内部に浸透し、ポイドや亀裂を生成していたのである。このポイドによって微小な放電(部分放電)が発生し、それがノイズとなっていた。シリコンゴムを用いたままなんとかポイドの形成を食い止めようと対策品を製作して評価したが、改善の兆しはなかった。これと並行して樹脂モールド

に関する知見を得ようと、社内にこだわらずWeb検索してヒットしたのが東京大学の博士論文であった。著者はなんと日立製作所機械研究所(当時)の研究者である。まさに灯台下暗し、さっそくアドバイスを依頼し、その結果に基づいてシリコンゴムはきっぱりと諦めて実績のある材料であるエポキシ樹脂に戻すことにした。ただ、エポキシ樹脂では硬化した際に埋め込んだ抵抗器に応力がかかり、抵抗温度係数が悪化するおそれがある。これを最小限に抑えるため抵抗器の形状や被覆材に工夫を凝らし、目標性能を達成することができた。高電圧の安定性評価において問題のノイズは消失し、これで解決したと安心したときには2013年8月になっていた。しかし、まだトラブルは続き、この抵抗を搭載して1.2 MV印加中に大放電が起きてしまう。新規に製作した抵抗モジュールが原因で放電を引き起こしたのである。原因はモジュール内部のはんだ付け不良により、異常な突起物や金属異物が存在していたためであった。そして、各モジュールの耐電圧性能を確認する試

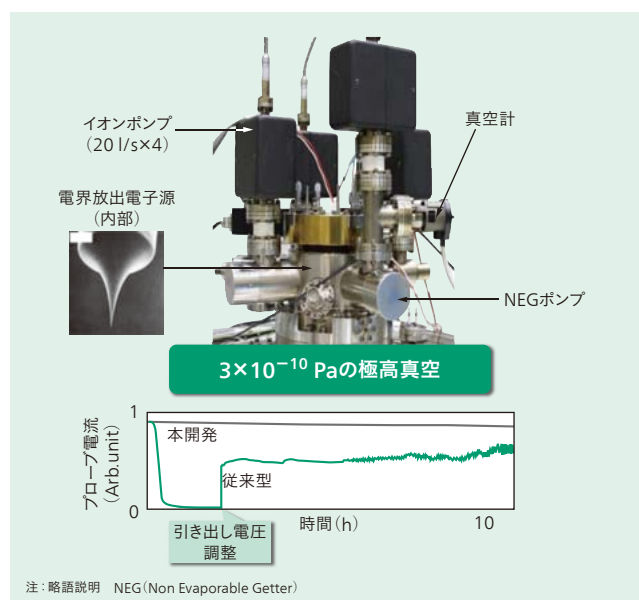


図9 | 高安定高輝度電子銃

これまでの電子銃は電子放出直後に放出電子が減少してしまうため、引き出し電圧などを調整しながら安定するのを待って使用していた。今回の開発では極高真空化することで電子ビーム引き出し直後から安定して使用できるようになった。

験法にも不備があった。製作工程をメーカーと議論して改善し、試験時に印加する電場の方向も改良してようやく最終合格品と思われるものを一式そろえることができた。

3.4.4 高安定高輝度電子銃

3.1節で述べた高安定高輝度電子銃の開発では幸いにもドラマティックな事件はなく進行し、ほぼ予定どおり2013年1月に目標の 3×10^{-10} Paという極高真空を実現し、15時間以上無調整で電子ビームを安定して放出することが確認できた^{24), 25)} (図9参照)。

3.4.5 加速管の汚染

抵抗モジュールのモールド材をエポキシに戻して再製作をしていた2013年春は、並行して加速管の立ち上げを行っていた。加速管とは44段の電極と碍子から成る円筒状の部品であり、高さは1.8 mにもなる。最上段の電極はマイナス1.2 MV、最下段の電極は0 Vの電位であり、各段30 kV程度の高電圧が印加される。内部は 10^{-9} Pa台の高真空になっており、電子ビームが上段から下段に向けて加速される。この部品は理想的な状態では1段で80 kV程度の耐電圧を持っている計算であるが、メーカーから納入されたときは碍子や電極と碍子の接合部の微小異物、微小突起や残留ガスなどにより、20 kVすら安定して印加できない。そのため、加速管の内部を高真空に保ちながら、ヒーターを備えた巨大なチャンバーで覆うような形でベーキングを行って脱ガスを行い、その後、各段に電圧をかけて小さな放電を故意に発生させて異物を飛ばしたり微小な突起を丸めたりする処理を行う。これにより、30 kV以上の電圧が長時間安定に印加でき、加速管として使用できるようになる。2013年5月、最後のベーキング後に加速管を観察すると、碍子の外部が茶色に変色していた。耐電圧性能の劣化は致命的ではなかったが、やや劣化した段やノイズのような微小放電が増えている段があった。茶色の物質を分析したところ、金属銅および塩化銅であることが判明した。この銅を完全に除去するとなると加速管の碍子表

面を薄皮一枚剥ぐように削り、再洗浄して再度ベーキングを繰り返すことになり、巨大な部品のため数か月は必要であった。当初予定の開発期間はあと10か月しか残されておらず、当初の目標である2014年3月の世界最高分解能の達成は不可能となってしまう。もし汚れたままベーキングを繰り返していれば電圧がかかるようになった可能性もゼロではなかったが、それで失敗したときのことを考えると、基本に戻って原因究明と対策をすべきとの判断を下した。この課題解決でも日立内部の研究所の知見と分析チームの能力に助けられた。物質の分析と同定、原因物質の特定、銅付着のメカニズムの解明と防止策を2か月足らずで確定した。加速管の再生処理・洗浄も同じころに完了し、再び電圧印加とベーキングによって耐電圧を向上させ、2014年12月末、ついに1.2 MVの電圧を安定に印加することができるようになった。高電圧ケーブルの通電試験から2年が経過していた。FIRSTの実行期間は2014年3月までであり、それまでに目標分解能を達成するのはどう考えても不可能であった。そこで、目標分解能の達成は2014年度にずれ込むが必ずや達成することを関係各方面に説明し、何とか理解を得た。年度内目標としては1.2 MVの電子顕微鏡画像取得をめざすこととし、3月12日に無事にそれを達成した。

3.5 世界最高分解能への挑戦

3.5.1 収差補正器の動作

電子顕微鏡としての最小限の機能は確認できたので、次は世界最高分解能に挑戦した。設計どおりにそれぞれが動作すれば40 pm台の分解能が達成できるはずであった。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いたが、それぞれを組み合わせたときの性能は総合的に確認していかなければならない。特にキーパーツの一つである収差補正器の性能は、本体の電子顕微鏡の性能が最終目標値に近くなければ確認することができない。そこで、一度搭載した収差補正器を取り外し、電子顕微鏡本体のみの性能を確認した。そ

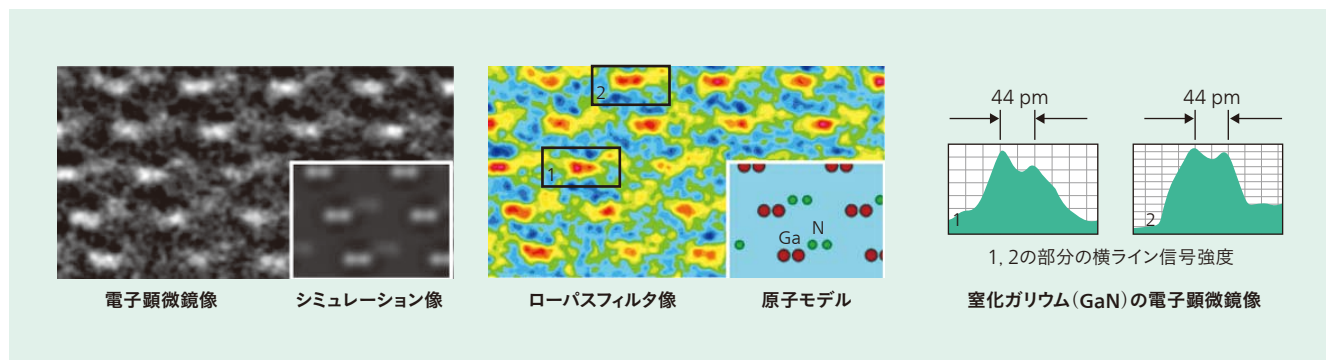


図10 | 窒化ガリウム (GaN) のGa原子間隔を確認

電子顕微鏡の分解能の実力を示すために窒化ガリウムの単結晶を用いて、2つのガリウム原子の44 pmの間隔を電子顕微鏡像で捉えることができた。

の後、収差補正器を再搭載してその性能を確認できたのは2014年7月であった。

3.5.2 世界最高分解能の達成

8月にすぐに分解能60 pmまで到達できたが、その後の進みは遅く、10月になっても50 pmにとどまっていた。その頃、9月にプラハで国際顕微鏡学会が開催され、東京大学と他社のチームがこれまでの電子顕微鏡分解能世界記録である47 pmを45 pmに更新したという知らせが入った²⁶⁾。世界一を出さねばならないというプレッシャーはさらに増した。この頃、FIRSTの事後評価ヒアリングの日程が11月26日になったとの情報が入った。この日までに何としても世界最高分解能を出さねばならない。分解能が50 pmにとどまっているのは、ステージの静止性能、電気的な外乱ノイズ、試料への電子ビーム照射ダメージの複合要因と考えられた。つまり、装置性能としてのポテンシャルはあるのだがそれを引き出せていないのだと考え、できるだけ早い露光時間で多くの場所を撮影する方針とした。観察に使用していた試料はGaN (窒化ガリウム) の結晶を壁界することで楔 (くさび) 形に加工したもので、その頂角部分の数原子 (厚さ数ナノメートル) を観察するので、じっくり見ていると電子ビームのエネルギーでその構造が壊れてしまうのである。そこで、電子ビームのフォーカスを別の箇所と合わせたのちに素早く観察場所に移動し、絨毯爆撃

的に数原子層の部分を多数撮影した。その結果ついに44 pmのGa原子の間隔 (かんげき) を観察することに成功した (図10参照)。すでに11月14日になっていたが、事後評価ヒアリングには世界最高分解能44 pmとして報告することができた。次にこの成果を世界に向けてできるだけ早く発表するために、論文誌への投稿準備を開始した。ただし、透過型電子顕微鏡の分解能を学術的に論じる場合には原子の間隔が見えているだけでなく、結晶の格子間隔をきちんと捉えた画像も求められる。そこで、タングステン単結晶を用いて実験を行ったところ、44 pmより良好な43 pmの格子間隔を再現性よく捉えることができた。このデータを付加して、アプライドフィジックスレターズ誌に2015年1月初めに投稿し、異例の速さで同月末には採択通知が届いた²⁷⁾。この論文が公開された日本時間の2月18日に新聞でも報道され、ついに分解能世界一の電子顕微鏡として認められるに至った。完成した原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の主要部を図11に示す。

4. 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡で開かれる世界

今回、顕微鏡の性能として最も分かりやすい分解能をクローズアップしたが、実はこの装置の真価は単に分解能世界一ということだけでなく、原子分解能で電磁場を定量的に計



図11 | 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡

左上に3個の大型高圧タンク，左下に電子顕微鏡の操作卓，中央に電子顕微鏡の鏡体（レンズ，試料ステージ，検出器など）部分，右に電子顕微鏡の正面写真を示す。

測できるというところにある。あらゆる材料は原子で構成され，材料が持つ性質は原子種や配置，そしてそれにより生じる「場 (field)」によって決まっている。新しい機能やずば抜けた性能を持ったいわゆる先端機能性材料を開発する場合，原子の配置とそこに存在する場を解明することが成功の鍵となる。特に材料内部の電磁場は材料の特性を大

きく左右することが多く，原子レベルの電磁場を計測することが重要である。例えば，二次電池の電極材料，磁石そして超伝導材料，熱電変換材料などがある（図12参照）。これらの材料の性能向上や新材料の実用化は，それを使用した多くのシステムの性能を飛躍的に向上させて社会を変える。

具体的な例を一つ挙げると，ハイブリッド自動車や電気自動車の実用化に貢献している高性能磁石は，現在のネオジム磁石を上回る性能のものが求められている。すなわち室温での高性能化はもとより，過酷な高温・高磁場環境下でも使用可能な材料が求められているのである。そのような磁石材料を開発するには，構成する原子の配列とそれによって決まる磁気的性質を評価し，構成材料やその組成，そして製造方法などの指針を得ることが重要であり，そのために原子レベルで磁場を見ることが必須になってきた。上述のとおり，原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡は，エネルギー問題や環境問題を解決するとともに，生活をより快適で便利にする新材料の開発を牽（けん）引していく。

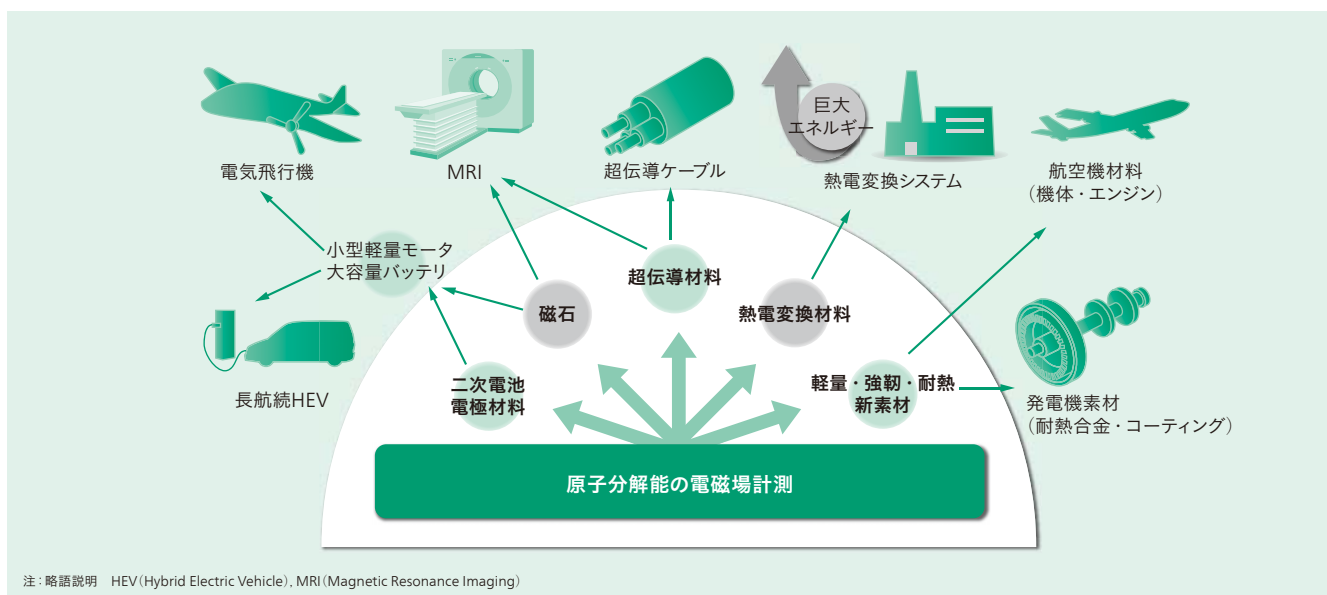


図12 | 原子分解能の電磁場計測によって開かれる世界

磁石，超伝導材料，熱電変換材料など省エネルギーや省資源のイノベーションを支える新機能材料の性能は，その内部の微小領域に存在する電磁場の状態に深く関係している。原子分解能の電磁場計測は，これらのメカニズムを解明して画期的な新材料の開発を牽引する。

そしてこれらの画期的な先端材料の開発を通して、基礎科学の発展に寄与することも期待されている。これらの応用研究は国内外の最先端研究機関と連携し、オープンイノベーションによって進めていく。例えば、ホログラフィー電子顕微鏡の応用技術研究ですでに連携している国立研究開発法人理化学研究所をはじめとする国内外の研究機関と共同研究を進めることで、画期的な材料開発とその物理の解明に取り組んでいきたい。

5. おわりに

原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡が完成した。しかし、この装置を構想した外村と、エンジニアとしてその構想を実現してきた松井は、誠に残念なことに完成を待たずに病に倒れた。さらに本文にも書いたように技術的にも多くの困難があり、完成を危ぶまれたことは数知れずであった。これらを克服して完成できたのは、日立の研究開発とモノづくりの層の厚さ、実力の高さ、そして支援を惜しまない伝統のおかげであると痛感した。そして、多くの大学や研究機関の先生方や支援機関の方々が応援、そして日立グループ以外の企業の方々が、困難なモノづくりの課題に対して我々と一緒になって取り組んでいただいたおかげである。ここに深く御礼申し上げる。

本開発は、総合科学技術・イノベーション会議により制度設計された最先端研究開発支援プログラムにより、独立行政法人日本学術振興会を通じて助成されたものである。

参考文献など

- 1) 一般社団法人電気学会：でんきの礎―振り返れば未来が見える―，第2回，p.10 (2009.7)，
<http://www2.iee.or.jp/ver2/honbu/30-foundation/data02/ishi-02/ishi04.pdf>
- 2) ブラッセル万国博覧会で日立にグランプリ授与さる，日立ニュース，日立評論，40，9，1142 (1958.9)
- 3) 原田，外：日本の電子顕微鏡技術の発展，顕微鏡，46 (3)，3-47 (2011)
- 4) 大林：イノベーションを支える電子顕微鏡の進化，開拓者たちの系譜18，日立評論，91，11，806~811 (2009.11)
- 5) M. Watanabe, et al.: 1 Million Volt High Voltage Electron Microscope, J. Electron Microsc., 17(4), 289-300 (1968)
- 6) S. Katagiri, et al.: Development of High Voltage Electron Microscope, J. Electron Microsc., 18(1), 1-11 (1969)
- 7) 300万ボルト超高压電子顕微鏡を開発，日立ニュース，日立評論，52，10，963 (1970.10)
- 8) 極微の世界を動的に観察できる世界初，常用300万Vの超高压電子顕微鏡，ハイライト，日立評論，78，1，10 (1996.1)
- 9) D. Gabor: A New Microscopic Principle, Nature, 161, 777-778 (1948)
- 10) 外村，外：電界放射形電子顕微鏡による電子線ホログラフィー，日立評論，61，11，795~798 (1979.11)
- 11) A. Tonomura, et al.: High Resolution Electron Holography With Field Emission Electron Microscope: Jpn. J. Appl. Phys., 18, No.1 (1979)
- 12) N. Osakabe, et al.: Observation of recorded magnetization pattern by electron holography, Appl. Phys. Lett. 42 No.8 746 (1983)
- 13) N. Osakabe, et al.: Experimental confirmation of Aharonov-Bohm effect using a toroidal magnetic field confined by a superconductor, Phys. Rev. A 34 No.2 815 (1986)
- 14) T. Matsuda, et al.: Magnetic field observation of a single flux quantum by electron-holographic interferometry, Phys. Rev. Lett., 62, No.21, 2519-2522 (1989)
- 15) K. Harada, et al.: Real-time observation of vortex lattices in a superconductor by electron microscopy, Nature, 360, 51-53 (1992)
- 16) A. Tonomura, et al.: Demonstration of single-electron buildup of an interference pattern, Am. J. Phys., 57, No.2, 117-120 (1989)
- 17) ロバート・P・クリス (著)，青木薫 (訳)：世界でもっとも美しい10の科学実験，日経BP社 (2006)
- 18) T. Kawasaki, et al.: Development of a 1 MV field-emission transmission electron microscope, J. Electron Microsc., 49, (6), 711-718 (2000)
- 19) A. Tonomura, et al.: Observation of individual vortices trapped along columnar defects in high-temperature superconductors, Nature, 412, 620-622 (2001)
- 20) M. Haider, et al.: Correction of the spherical aberration of a 200 kV TEM by means of a hexapole corrector, Optik 99, 167-179 (1995)
- 21) L. W. Swanson: Comparative study of the zirconiated and built-up W thermal-field cathode, J. Vac. Sci. Technol., 12, 1228 (1975)
- 22) 明石，外：暗視野結像法による格子分解能の追求，日本顕微鏡学会，第65回学術講演会 (2009.5)
- 23) 川崎，外：1.2MVホログラフィー電子顕微鏡の設置環境，日本顕微鏡学会，第69回学術講演会 (2013.5)
- 24) K. Kasuya, et al.: Stabilization of a tungsten<310> cold field emitter, Journal of Vacuum Science & Technology B Vol. 28, L55 (2010)
- 25) K. Kasuya, et al.: Magnetic field superimposed cold field emission gun under extreme-high vacuum, J. Vac. Sci. Technol. B32(3), 031802 (2014)
- 26) H. Sawada, et al.: Sub-angstrom resolution realized with super high-resolution aberration corrected STEM at 300 kV, 18th International Microscopy Congress (2014.9)
- 27) T. Akashi, et al.: Aberration corrected 1.2-MV cold field-emission transmission electron microscope with a sub-50-pm resolution, Appl. Phys. Lett. 106, 074101 (2015)

執筆者紹介



品田 博之

日立製作所 研究開発グループ 基礎研究センタ 所属
現在，超高压電子顕微鏡の開発とその応用に従事
日本顕微鏡学会会員，応用物理学会会員，計測自動制御学会会員