

# 1.2 MeV 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の開発

品田博之\*

## 1. 開発の背景

透過電子顕微鏡で観察に使用する電子ビームのエネルギーは一般に 100 keV~300 keV であるが、できるだけ厚い試料(試料の薄片化は必要だが)を鮮明に観察するために、エネルギーが 1 MeV~3 MeV の超大型の超高圧電子顕微鏡と呼ばれるものも存在する。また、電子線ホログラフィー法<sup>(1)</sup>などを用いれば、材料内部の電磁場を原子レベルの分解能で計測し、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<sup>(1)</sup>に実用化された。その後、高分解能化と、より厚い試料の観察を可能にすべく 1 MeV 超高圧ホログラフィー電子顕微鏡が開発された(2000年稼働)<sup>(2)</sup>。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、1 MeV 装置の成果を踏まえ、電子顕微鏡に関する最新の技術を結集して2010年から2014年にかけて、内閣府総合科学技術・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、日本学術振興会を通じた助成により開発された。現在、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の解明や先端機能性材料の研究開発などに活用されている。

## 2. 装置の概要

装置の構造は図1に示す通り-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、そして電子顕微鏡本体で構成され、タンク内部の部品には電子を加速するための-1.2 MV の高電圧がかかっている。また、高圧電源から発生するノイズの影響を抑えるため、それらは電子顕微鏡本体から離して設置され、-1.2 MV を2本の高電圧ケーブルで繋ぐ構造となっている。装置の特徴は「世界唯一、球面収差補正器を搭載した超高分解能超高圧電子顕微鏡であって、電子線ホログラフィー計測が可能な装置=原子分解能レベルで材料内部の電磁場を計測できる装置」である。電子顕微鏡において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非常に高い安定性が要求され、大型の超高圧電子顕微鏡には搭載されたことがなかった。この開発では下記の超高安定化技術を開発して

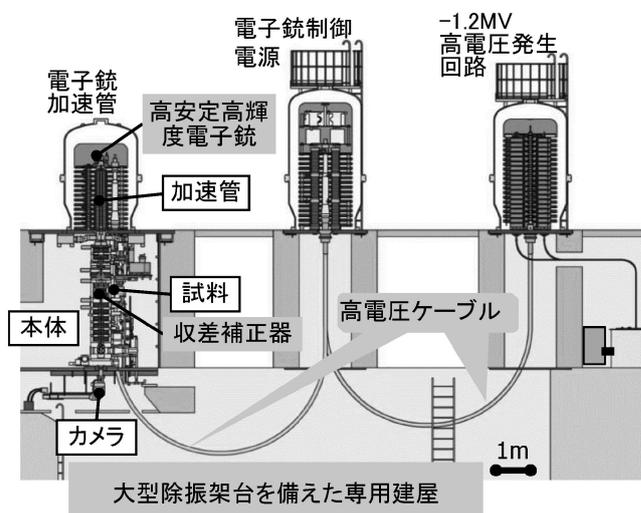


図1 原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の概要：高い安定性を確保するため、高圧電源を電子顕微鏡本体から分離した3タンク方式の1.2 MV の超高圧電子顕微鏡。

それを実現した。

- (1) エネルギーのばらつきを抑えた 1.2 MeV の電子ビーム加速のための  $3 \times 10^{-7}$  の高安定-1.2 MV 電源システム
- (2) 電子ビームを長時間安定して放出できる  $3 \times 10^{-10}$  Pa の極高真空電子銃
- (3) 分解能の劣化要因を排除する、高い遮音性と低雑音性： $\leq 20$  dB (> 200 Hz), 床振動： $\leq 7.2 \times 10^{-4}$  cm/sec<sup>2</sup> (@ 100 Hz) を備え、空調停止後室温変化： $\pm 0.2^\circ\text{C}/8$  hr の専用建屋

## 3. 開発裏話

開発における予期せぬ技術的トラブルのうち2件について紹介することで何らかのお役に立てればと思う。

### (1) 高電圧ケーブルの耐電圧

顕微鏡を収める建屋内に新規開発した高電圧電源や高電圧ケーブルを搬入し、-1.2 MV の高電圧の印加テストを実施したが、-900 kV で放電(耐電圧不良)が起きてしまった(図

\* 株式会社日立製作所 研究開発グループ 基礎研究センタ；主管研究長(〒350-0395 埼玉県比企郡鳩山町赤沼2520番地)  
1.2-MeV Atomic Resolution Holography Electron Microscope; Hiroyuki Shinada (Research & Development Group Center for Exploratory Research, Hitachi, Ltd., Hiki-gun, Saitama)  
Keywords: transmission electron microscope, electron holography, ultra-high voltage electron microscope, aberration collector, electrical breakdown, acceleration tube, contamination, high stability high-voltage generator, high-voltage cable  
2019年2月21日受理[doi:10.2320/materia.58.334]

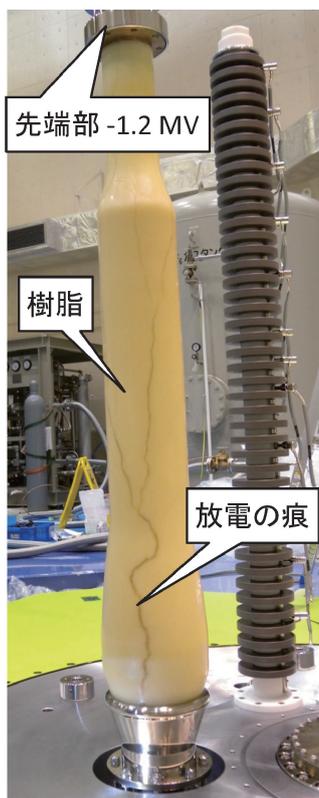


図2 放電発生後の高電圧ケーブル先端部。高電圧印加試験を行ったところ放電が発生し、樹脂の表面に放電の痕が残った。

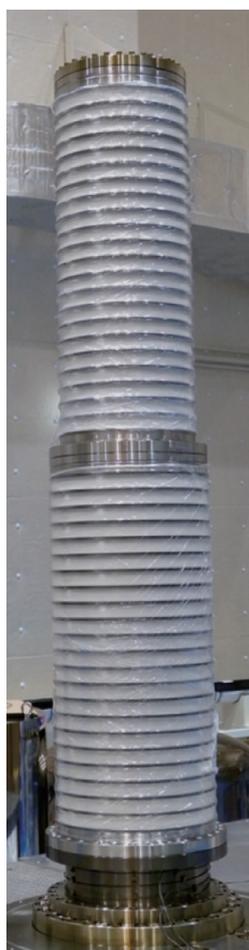


図3 加速管：  
高さ～1.8 m  
直径～40 cm.



図4 変色した碍子：  
○の部分に顕著に変色。

2). 2000年に完成した1 MeVの電子顕微鏡用に開発したケーブルの設計を踏襲し、それに余裕を持たせた構造で、工場出荷前に $-1.3$  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。放電原因の仮説を立てては、検証実験を繰り返したが究明にはなかなか至らなかった。そこで、一つの決定的な原因ではなく複合要因であると考え、それらが運悪く重なる状況を想定して検討を進めた。まずは、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取り入れたシミュレーションにおいて、電場がほとんどゼロとみなされていた場所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が、それは放電を引き起こすほどの強度ではなかった。そこで、複合要因となりうる理想状態からの乖離(微小異物やバリや寸法公差に伴う空気だまりの存在など)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。その結果を受けて、問題となる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、問題は解決した。十数年前の1 MeV装置でも同じような電位上昇は起きていたはずなのだが、その際は運よく他の要因の程度が小さかったのだ。これにより得た教訓は、自明なことだが以下の二つである。「(数少ない最初の)成功は(運が良かっただけ)失敗のもと」「一度できたことは必ずできるのであきらめない」。

## (2) 加速管の汚染

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(図3)。最上段 $-1.2$  MV、最下段0 Vで、各段30 kV程度が印加される。ただし最初は電極と碍子の接合部の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ず、ヒーターを備えた巨大な蓋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突起を丸めたりすることで初めて実用に供する。あるとき、ベーキング後に加速管の碍子の外部(非真空部)が褐色に変色してしまった(図4)。変色部を分析したところ金属銅と塩化銅であった。これを完全に除去するには碍子表面を薄く削り、再洗浄後再度ベーキングを繰り返すことになり数カ月を要してしまう。ケーブル放電対策により計画は遅延、このままでも電圧がかかるようになる可能性はある中での瀬戸際の判断だったが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を仰ぎ、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、塩素成分をわずかに含む作業用手袋を蓋内へのヒーター設置作業で使用した際に、破れた破片のごく一部が内部に残存していたためであった(炭化した微小破片を発見)。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。その後もいくつかの技術的な困難はあったものの、タングステン単結晶を観察して43 pmの格子間隔を再現性よくとらえることができ、目標としていた世界最高分解能記録(2014年当時)を2014年11月に達成できた<sup>(3)</sup>。

## 4. おわりに

高電圧の安定印加実現までの裏話2件に絞ったが他にも多くの苦勞を味わった。類似の成功例があったとはいえ、新しいものを開発する際には思わぬ落とし穴があるのだということと失敗事例を正式な文書として残しておくことの大事さを身をもって学ぶこととなった。

## 文 献

- (1) A. Tonomura, *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys., **18**(1979), 9-14.
- (2) T. Kawasaki, *et al.*: J. Electron Microsc., **49**(2000), 711-718.
- (3) T. Akashi, *et al.*: Appl. Phys. Lett. **106**(2015), 074101.