88年の常識を覆す電子顕微鏡を開発
世界で初めて磁力の起源を捉える

柴田 直哉 Shibata Naoya
東京大学 大学院工学系研究科 附属総合研究機構 機構長・教授
2014年より先端計測分析技術・機器開発プログラム チームリーダー

河野 祐二 Kohno Yuji
日本電子株式会社 EM事業ユニット スペシャリスト
2014年より先端計測分析技術・機器開発プログラム サブリーダー

特集1

OVERVIEW

電子顕微鏡は試料を強い磁場中に置くため、外部磁場の影響を強く受ける磁石や鉄などの磁性材料の原子観察は、極めて困難であると考えられてきた。この88年にわたる常識を覆したのは、東京大学大学院工学系研究科附属総合研究機構の柴田直哉機構長・教授だ。試料に磁場がかからない新構造のレンズを組み込んだ「原子分解能磁場フリー電子顕微鏡（MARS）」を開発するとともに、磁力の起源である原子磁場の直接観察にも世界で初めて成功した。今後、MARSはさまざまな材料・デバイスの開発に大きく貢献することが期待されている。

計測機器が支える科学の発展 分解能向上への飽くなき追求

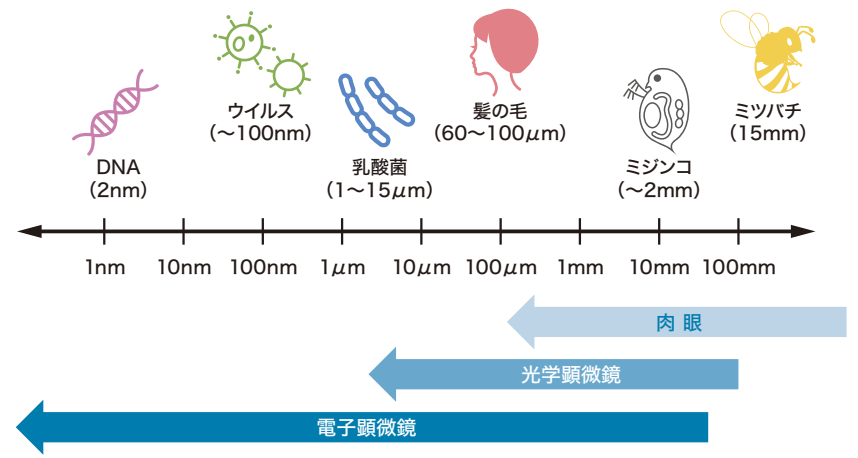
レンズを使えば物が大きく見えることは2世紀頃から知られていたが、1590年に2枚のレンズを組み合わせた光学顕微鏡が発明され、性能が向上した結果、細胞や赤血球の発見につながった(図1)。「これまでの歴史を見ると、画期的な計測機器の発明をきっかけに、さまざまな領域で科学が爆発的に発展してきました。科学の発展は、計測機器によって支えられてきたといっても過言ではありません」と語るのは、東京大学大学院工学系研究科附属総合研究機構の柴田直哉機構長・教授だ。

一般に顕微鏡の性能は、識別できる2点間の最短距離である分解能で表すことができる。光学顕微鏡の場合、可視光を利用するため、光の波長0.4〜0.7マイクロ(マイクロは100万分の1)メートル程度だ。19世紀末に、より波長の短いX線や電子が発見されると、1931年に電子線を用いた顕微鏡、透過型電子顕微鏡(TEM)がドイツで開発された。電子線の波長は可視光の10万分の1以下なので、顕微鏡の性能は飛躍的に向上した。

また、電子顕微鏡では光学レンズの代わりに強力な磁界レンズを用いる。強磁場中に電子線を入射するとローレンツ力という力が働いて電子線が曲がる現象を利用することで、対物レンズの役割を果たす。電子顕微鏡は、試料を透過した電子線を検出して拡大像を得るTEMと、試料表面をスキャンして表面から出る二次電子や反射電子を用いて拡大像を得る走査型電子顕微鏡(SEM)に大別される(図2)。

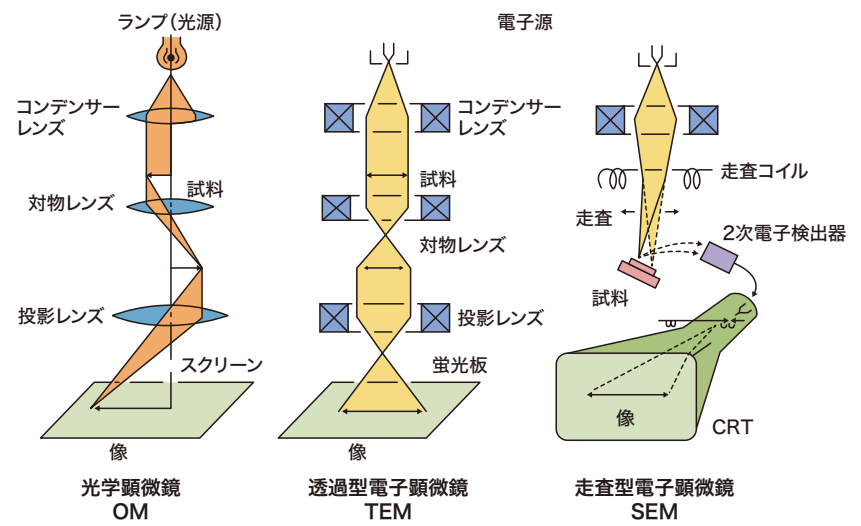
2000年代に入ると、極めて細く絞った電子線で試料をスキャンすることで超高分解能像を得る、走査型透過電子顕微鏡(STEM)の性能が著しく向上した。1オングストローム(100億分の1メートル)を下回る超高分解能を実現し、原子レベルで試料の構造や組成を直接観察することが可能になった。こうして原子スケールでの観察が可能になると、原子の配列だけでなく、物性に影響をもたらす物質界面の電場や磁場を原子レベルで観察したいという声が高まっていった。

図1 各種観察手段の分解能



人の目の分解能はおおよそ0.1ミリメートルとされる。それよりも小さいウイルスや原子、DNAの観察に「電子顕微鏡」が使用される。

図2 光学顕微鏡と電子顕微鏡(TEM、SEM)の仕組み



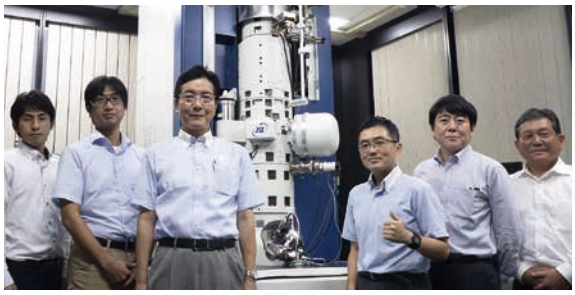
電子顕微鏡では、可視光より波長の短い電子線を使うことで、より小さな対象物を観察できる。

世界初、原子の電場を可視化 原子磁場観察に残る3つの課題

現時点での世界最高性能を誇る電子顕微鏡の開発にも参画している柴田さんだが、元はセラミックスなどの無機材料が専門で、電子顕微鏡をツールとして利用してきた一人だった。博士課程を終えた柴田さんは03年に米国オークリッジ国立研究所の研究員となり、最新のSTEMを使って窒化ケイ素やアルミナなどのセラミックスの界面原子構造の観察に取り組んだ。

日本に戻ってからは、新たにエネルギー材料や触媒の研究に取り組んでいたが、機能発現のメカニズムを本質的に解明するためには原子の構造だけでなく、原子構造が生み出す電気的、磁気的な性質を直接観察・解析する必要があると考えた。「当時の顕微鏡では、このような観察は難しかったので、それなら自分の手で開

図3 東京大学・日本電子産学連携室



研究開発だけでなく、セミナーや見学会を開催するなど、人材育成にも力を入れてきた。2020年からは次世代電子顕微鏡法社会連携講座も発足させた。写真は現在の連携室メンバー。左から日本電子・熊本明仁卓越研究員、東京大学・石川亮特任准教授、東京大学・幾原雄一室長、東京大学・柴田直哉教授、日本電子・斎藤光浩副室長、日本電子・高野清副室長。

発しようと考え、JSTのさきがけに応募しました」と柴田さんは装置開発の動機を語る。

この研究では、電子の透過散乱現象を高精度に捉えるため、検出器の検出面を16分割し、試料内部の電場によって影響を受けた電子線の進行方向の角度や位置などの変化がわかるようにした。得られた信号から電場の寄与によるものを抽出する計算・解析手法を確立した。そして、12年に原子内部の電場分布の可視化に世界で初めて成功した。

続いて、より困難な原子磁場の観察への挑戦が始まった。柴田さんは「電子顕微鏡で原子の磁場を見るには、3つの大きな技術課題がありました」と振り返る。第1に、根本的なレンズの問題だ。電子顕微鏡で磁性を持つ材料を観察する場合、磁界レンズの強磁場と試料が強く相互作用し、物質の磁気構造が大きく変化したり、破壊されたりしてしまう。試料の構造を壊さない程度に磁界レンズを弱めると分解能が極端に低下して、原子レベルの観察はできなくなる。電子顕微鏡を使う研究者の間では「磁石の原子観察は難しい」というのが常識で、それを覆す必要があった。

第2に、原子レベルの磁場信号は極めて微弱であり、鉄の単原子の場合、原子磁場は原子電場に比べて1000分の1程度の信号強度しかないことだ。この極微弱な原子磁場を捉える方法を開発しなくてはならない。第3に、検出した信号の中に電場と磁場の信号が共存しているために、極微弱な磁場信号だけを効果的に抽出する方法を開発する必要があった。

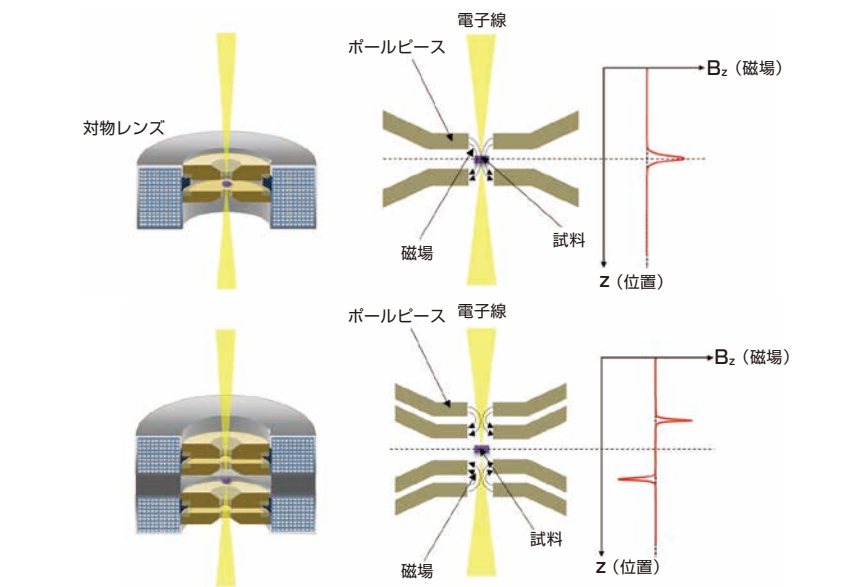
この3つの難問にチャレンジしたのが、東京大学と日本電子の共同研究チームだ。両者は05年に東京大学大学院工学系研究科の幾原雄一教授を中心に産学連携室を創設し、次世代の電子顕微鏡開発に向けてさまざまな実績をあげてきた(図3)。原子レベルで磁場を観察するために、柴田さんがチームリーダー、日本電子EM事業ユニットの河野祐二スペシャリストがサブリーダーとなって、14年からJST先端計測分析技術・機器開発プログラム「原子分解能磁場フリー電子顕微鏡の開発」をスタートさせた。

未踏技術への飽くなき挑戦 新構造の対物レンズを開発

研究チームは、電子顕微鏡の「常識」を覆すために、全く新しい磁場フリー対物レンズの開発を目指した。電子顕微鏡では通常、対物レンズで電子線を絞るため、試料室には強力な磁場が印加されている。これに対して、柴田さんらは磁場が逆向きに発生する2枚の磁界レンズを上下に組み合わせ、試料室のところでお互いの磁場が相殺するという斬新な対物レンズ構造を提案した(図4)。「さらなる未踏技術への挑戦でしたが、理論的には可能だと確信していました。しかし、実際に試作装置で磁場フリー環境を実現するための細かい調整が本当に大変でした」と振り返る。

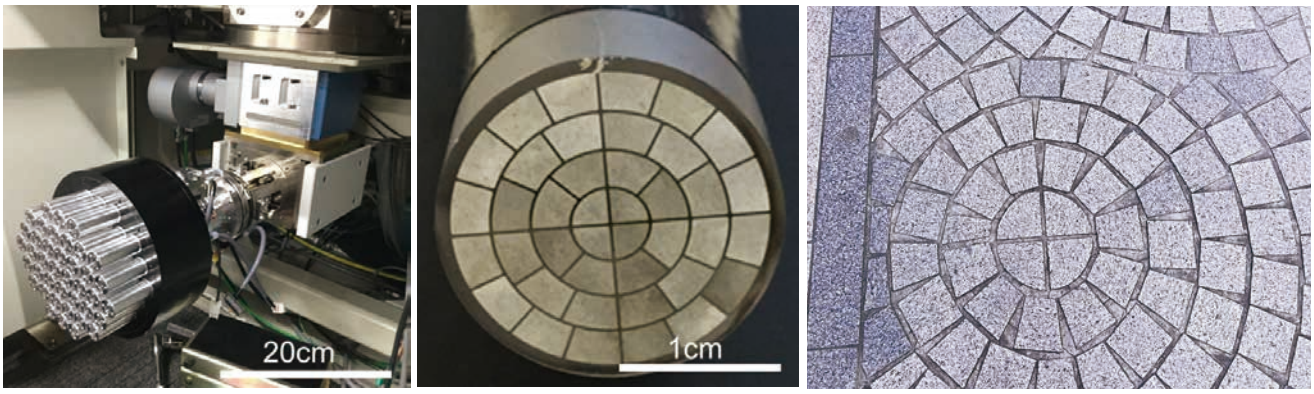
ここで活躍したのが、サブリーダーの河野さんだ。しかしもともとはSEMが専門で、TEMのレンズ開発をしたことがなかったというから驚きだ。「既成概念にとらわれずに取り組んだのが良かったかもしれません」と語る。日本電子が培ってきた電子顕微鏡に関する基盤技術を礎に、柴田さんの描く電子顕微鏡を追い求めた。試作装置において磁場フリー環境を阻害している要因を1つ1つ取り除いていくために、ネジ1本に至るまで部品の材質、形などを徹底的にチェックしたという。

図4 従来の対物レンズ（上）と新開発の磁場フリー対物レンズ（下）の断面比較図



磁場フリー対物レンズは、上下2つのレンズで発生する磁場が上下反対向きであるため、試料の位置で磁場同士が打ち消し合い、試料環境を無磁場条件に保つことができる。

図5　本研究独自の40分割型STEM検出器



原子の磁場信号を捉えるため、分割検出領域の面積をそろえた超高感度検出器と新規計測手法を開発した。右は開発のヒントとなったタイルの写真。

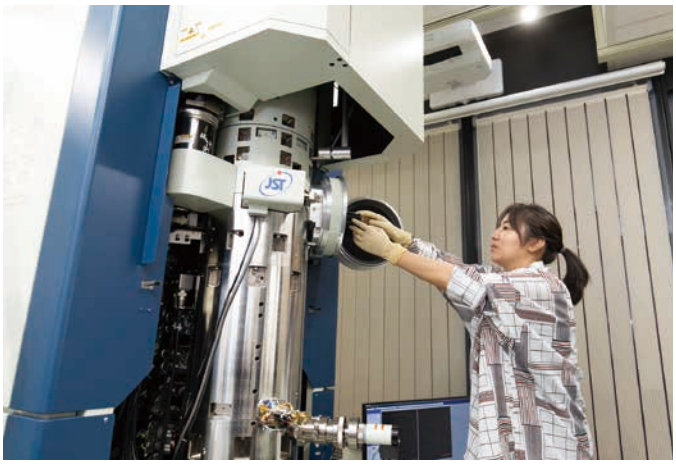
高真空下で観察を行う電子顕微鏡は、超精密かつデリケートな装置だ。一口に分解・組み立てといっても容易ではない。ある部品を調整すれば、他の部品に影響が出てやり直しになることもしばしばだった。河野さんは膨大な部品を試すために50回近く分解・組み立てを繰り返し、試行錯誤を重ねた。そしてついに、試料室の磁場フリー環境と原子分解能観察の両立を実現した。

次の課題は、原子レベルの極微弱な磁場を捉えることだ。原子の磁場と入射電子との相互作用は極めて弱いため、磁場信号の検出は非常に難しいことが予想されていた。微弱な磁場信号を捉えるためには、超高感度・高速検出器を開発しなければならない。検出器の性能は先の研究で分割数を増やせば良いとわかっていたと柴田さん。「ヒントはたまたま街を歩いていて見かけたタイルの模様です。すぐ河野さんに写真を送りました」。河野さんとともに各分割領域の面積がほぼ同じになるように工夫した40分割の検出器は、極微弱な磁場信号を正確に捉えることに成功した(図5)。

第3の課題は、電場と磁場の信号の分離である。原子近くには電場と磁場が共存しているため、得られた画像から電場による寄与を差し引いて、磁場のみの信号を抽出しなければならない。そこで、柴田さんの研究室の関岳人助教が中心となり、原子磁場像の理論シミュレーション技術を新たに開発し、河野さんと試行錯誤しながら電場による寄与を相殺し、磁場信号のみを抽出する画像処理技術を開発した。

こうして主要な3つの課題を解決

図6　MARS全景写真



中央の円柱に新開発の対物レンズと最新の収差補正装置(DELTA型コレクター)が導入されている。試料ホルダーをセットし、材料などの観察を行う。

し、磁性材料の原子レベルでの観察が可能となる原子分解能磁場フリー電子顕微鏡（Magnetic-field-free Atomic Resolution STEM。通称MARS（マーズ））が完成した（図6）。この命名にも柴田さんの込めた思いがある。「人類が火星に行くくらい難しい挑戦だという思いを込めて、この顕微鏡に火星を意味するMARSという名前を付けました。後日談になりますが、火星には地磁気がない、つまり磁場フリーだと聞き、何という偶然かと驚きました」と笑顔で語る。

産学連携の二人三脚で歩む新材料開発への貢献も期待

共同研究チームは、MARSでの原子磁場観察を実証するため、鉄鉱石の一種であるヘマタイトの結晶中の鉄原子の磁場観察を行った（図7）。その結果、鉄原子自体が原子磁石と呼ばれる微小な磁石であることを実証するとともに、ヘマタイトが示す磁性の起源を原子レベルで観察することに成功した。この成果は、20年7月に英国科学誌『Nature』に投稿したというが、実際に掲載されたのは22年2月だった。

誰も観察していないことを正しいと証明するのは難しい。論文とともに公開されている査読者との応答履歴から、公開までの様子をうかがい知ることができる。「公開までに、通常の論文を10本書くくらいの労力がかかりました。室温での原子磁場の可視化は評価されたものの、低温下で磁気構造が変化する『モーリン転移』を示すように、といった追加データを求められました。低温測定は私たちも考えていたことだったので、JSTの追加支援で低温測定用の試料ホルダーを急ピッチで導入し、低温での磁気構造変化を捉えることができました。この粘りやあきらめない気持ちこそが、新たな研究を切り開くには絶対に必要です」と柴田さんは振り返る（図8）。

極微の世界を見るために進化してきた顕微鏡の歴史において、MARSが原子の磁場観察を達成したことは、産業界にとっても極めて大きな成果だ。例えば磁性材料は、発電機や変圧器、電気自動車や家電、産業用のモーターなどに幅広く使われている。また、磁性材料の高性能化に貢献できれば、こうした機器の高効率化、省エネ化にも大きく寄与できると期待されている。また、IT社会のカギとなる磁気デバイス、磁気メモリー、磁性半導体、量子デバイスなどの先端素材やデバイスの研究開発を先導する有力な計測手法ともなるだろう。

MARSは、電場・磁場の観察だけでなく、無機・有機・金属材料を原子レベルで観察できる汎用（はんよう）性の高い電子顕微鏡としても期待されている。今回製作したMARSの加速電圧は200キロボルトだが、柴田さんたちは、その潜在能力をさらに引き出す300キロボルトのMARSの開発も目指している。

産業に活用するためには、装置の利用しやすさも重要だ。MARSは磁性体専用の顕微鏡ではなく、従来通りの電子顕微鏡としての利用も可能だ。「私たちしか使えない装置では意味がありません。いずれ汎用性の高い装置にしたいということは、常に頭に置いていました」と柴田さん。将来的には、世界中の全ての電子顕微鏡を置き換えたいと期待を語る。産学連携を通じて二人三脚で歩んできた柴田さんと河野さんの挑戦は、これからも続いていく。

（TEXT：森部信次、PHOTO：石原秀樹）

図7 ヘマタイト結晶

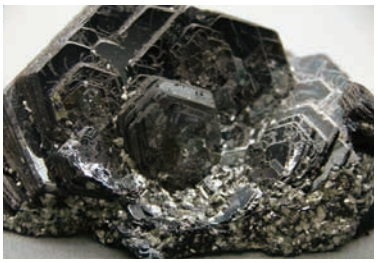
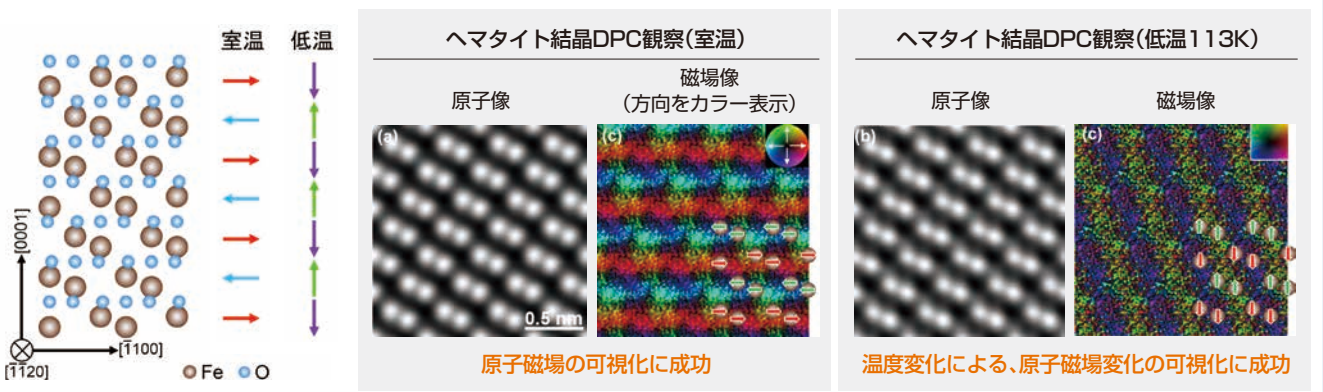


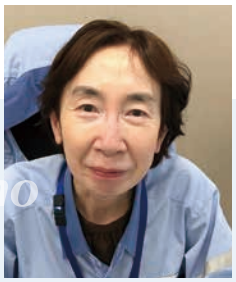
図8 ヘマタイト結晶の原子像、磁場像



左はヘマタイト結晶の模式図。[0001]方向にFe原子層がO層を挟んで積層する原子構造を持っており、室温と低温ではFe原子の磁気モーメントの方向が異なる。柴田さんらは室温から低温に冷却することで磁気構造が変化するモーリン転移によって、原子磁場が大きく変化する様子を可視化した。室温下でのヘマタイト結晶の原子像、磁場像（中央）と低温下（113ケルビン、約-160度）でのヘマタイト結晶の原子像と磁場像（右）。

MARSによる「原子スケール観察」産業界でも強力なツールに

MARSは、学術分野だけでなく産業にも革新をもたらすことが期待されている。現在、共同研究パートナーとしてさまざまな分野の企業がMARSを利用している。今回、その中の1つである日本製鉄のお二人に産業分野での活用や展望を聞き、柴田先生に締めくくってもらった。



Kawano Kaori

■ 河野 佳織
日本製鉄株式会社
技術開発本部 フェロー

Taniyama Akira

■ 谷山 明
日本製鉄株式会社
先端技術研究所 解析科学研究部 室長

Shibata Naoya

■ 柴田 直哉
東京大学 大学院工学系研究科
附属総合研究機構 機構長・教授

これまでのご研究や電子顕微鏡との関わりについてお聞かせください。

河野　油井管などの鋼管、自動車用鋼板などの材料設計や組織制御の研究に携わってきました。高強度・耐食性に優れた製品開発では、合金元素をどの程度入れるか、析出物をいかに分散させるかということが重要です。電子顕微鏡は、材料が結晶化する際の塑性変形や転位が起きる過程、結晶粒界の析出物の存在などを観察する上で欠かせないツールとなっています。

谷山　大学時代から、超高圧TEMやX線回折などを使って材料解析を行ってきました。入社後は、TEMや放射光を駆使し、加熱による結晶の成長や磁場変化に伴って材料が変形していく様子をリアルタイムで捉える「その場観察」を通じて、新材料の開発だけでなく、製品トラブルの原因究明などに生かしています。

実際にMARSによる解析結果をご覧になっていかがでしたか。

河野　これまで磁性を持つ鉄の観察では、レンズ磁場の影響を抑えるために試料を可能な限り薄くしてきました。そうすると試料の表面だけを観測しているのと同じ状態になってしまい、実際に厚みを持った試料の物性データは得られないという問題がありました。MARSは、この難題を打ち破る画期的なブレークスルーです。例えば、鉄鋼材料開発の根幹である粒界構造の解析に使いたいですね。これまでは現象が起きた後の材料を解剖学的に分析することが主体でしたが、MARSにより原子レベルで観察や解析が可能になりましたから、高機能な材料開発に大きな道筋が見えてきました。

谷山　柴田先生とは長年共同研究をしてきましたが、MARSを使い始めたのは2年ほど前からです。鉄鋼材料を原子レベルで観察し、手応えを感じています。今後は、強力な磁性を持つ材料も原子レベルでの観察が可能になると期待しています。

今後の産学連携に向けて、どのようなことを期待されますか。

河野　今後も共同研究でさまざまな鉄鋼材料を解析していきたいと思います。その過程で新たにチャレンジングなテーマが生まれ、次の開発につながると期待しています。

谷山　鉄と一口に言ってもその中には多様な原子が含まれていますから、原子の配列だけでなく、原子の種類も見分けられるといいですね。

柴田　原子の種類を見分けることは可能です。すでに、粒界にたまりやすい不純物元素を見分ける取り組みを始めています。

少し個人的な話になりますが、私はたたら製鉄の本場の島根県出身です。郷土が生んだ俵国一先生をはじめ、KS鋼の本多光太郎先生、MK鋼の三島徳七先生など、日本の鉄鋼研究はそうそうたる先生方によって築き上げられてきました。人類の新文明を築いたのは鉄であり、鉄の研究は「古くて新しい」テーマです。鉄の分野で、未だ解明されていない重要な問題を新しい電子顕微鏡を使って原子レベルから解き明かすことが大学の役割であると思っています。そして、産業分野との連携による相乗効果を高め、若手研究者の育成にもつなげたいと考えています。

（TEXT：森部信次）