



筆

# 未来を拓く電子線理工学

藤田 広志\*

## 1. はじめに

最近の科学・技術の進歩は著しく、私達が子供の頃には全く“夢”と考えられていた宇宙旅行を始め、遠い所から光線一閃で総ての物体を溶かしてしまう破壊光線(レーザー)、磁力で浮上して超スピードで走る列車(リニヤー・モーターカー)、見えない飛行機(ステルス機)などなど、科学小説でのみ可能といわれたことが次々と実現されている。

その反面、地球上に現われた最も劣悪な生物といわれる人間は、46億年もたって、やっと自分達に適した環境に恵まれたにも拘らず、

“一度得た便利さは、それが自分達を滅亡に導くことが分っていても決してそれを手放しはない”という悪性のために、次々と公害を創り出し、争いを好む性質から、これら科学・技術を自からが滅ぶまで続けるであろう戦争のために次々と投入している。これらは、科学・技術が生み出した予想もしなかった結果の一面である。

正に科学・技術は双刃の剣であることを思い知らされる今日この頃ではある。冒頭に述べた人類の夢の実現は、その夢が大きければ大きいほど、裏返せば人間に於て危険極まりないものになる可能性が大きい。しかし、人間の英知は、私達が子供の頃によく聞いた「食糧の増産は人類の増加に及ばず、間もなく人類は餓死するであろう」とか、「化石燃料は遠からず枯渇

して、死の世界が訪れるであろう」と言わされた危機を現在も何となく凌いでいる。また、歴史に残る猛烈な天変地異にも人類は耐え、立直って来たし、権力を恣まゝにした民族はやがては亡び去り、新しい世代への交代が繰り返されても来た。最近では上述の自然破壊、科学・技術の悪用にも鋭い批判の声が挙りつゝあり、全世界的にそれらの抑制と監視の機構が遅まきながらも形成されつつある。人類は自分自体が自然の単なる所産であり、超複雑な自然の仕組みに驚嘆しつつ、やっとそれらを理解し始めたに過ぎないことを自覚しつゝあるといえる。従来は、科学・技術は行政の単なる道具と見做され勝ちであり、その結果、科学・技術が双刃の剣であることを理解せずに、便利さのみに利用され続けて来た。しかし、最近では、大企業のトップにも技術畠の人が就任する例も見られるようになったことから、今後は行政にも多くの科学・技術畠の人々が登場することを期待したい。

以上のように、科学・技術の重要性と危険性を十分理解した人々によって、人類の生活が管理・運用される環境が整備された時点では、科学・技術は、地球に優しく、人類が46億年ぶりにやっと恵まれた環境の中で、平和な生活が送れるように活用されるであろう。そのような環境下においてのみ、我々は安心して、自由に、全力を挙げて自然に問い合わせ、その本質を理解する努力が続けられるであろう。大学の理工学系では、そのような環境下で進められる先端科学・技術の中で次世代の人材を養成することが必要であり、その実現の一日も早いことを望みたい。

ところで、自然科学とは自然を理解することに他ならないが、自然は超複雑であり、その本質を見極めることは極めて難かしい。従って、



\*Hiroshi FUJITA  
1926年9月7日生  
昭和27年大阪大学工学冶金学科卒業、大阪大学名誉教授  
現在、近畿大学理工学総合研究所、教授、工学博士、材料科学超高圧電顕学  
TEL 0726-49-0677

色々と新しい手法で問い合わせることが必要であり、従来の常識にとらわれない新しい発想が不可欠である。その意味では、私達の阪大では特別設備に他大学には例を見ない諸装置が開発され、研究手法も独創性に富んでおり、研究環境としては極めて優れていると言つてよい。筆者も、阪大に在職中に、そのような装置の一つである、3,000kVという世界最高電圧の超高電圧電顕の製作と、その応用研究に従事する幸運に恵まれた。以下に述べる事項は、その結果得られたものの中から、特に高エネルギー電子線を用いた自然科学の探究と、その結果を応用した新素材の創製に関する研究に関するもので、筆者らはこれを“電子線理工学”と呼んでいる。この分野は、現在阪大が世界の先端を歩んでいくと同時に、21世紀において大きく発展するものと筆者が信じているものである。

## 2. 電圧を高めることによる 電子線の不思議

電子は宇宙に存在する最も小さい荷電粒子であり、素粒子の一つでもある。この電子は、ご承知のように波の性質と粒子の性質を併せ持つことが実証されているが、最近興味ある2つの現象が見出されている。その一つは、電圧を上昇させることによって物質内を電子が異常に透過する電子チャンネリングと呼ばれるものと、今一つは、密度を極度に上昇させることによる物質の局所的溶解・蒸発現象で、何れも阪大で実証され、詳細に研究されているものである。まず後者は、材料の極微細な穴開け、切断、溶接、表面処理などのミクロな電子線加工の本流をなすもので、その応用範囲は極めて広い。従来、電子線で加工する場合は、電子の持つエネルギーは熱に変換するために試料の温度が上り、その結果、材料は究極として溶解すると考えられていた。そのため、板に穴を開ける場合も、板の厚さより小さい穴は開けることは出来ないと考えられていた。これに対して、荒田教授のグループは電子の加速電圧を最大600kVに上げると同時に、出力300kWの大出力電子ビーム熱源を開発した。このような高密度電子線を数mm径に絞って用いると、電子線で照射さ

れた材料の部分は溶解を通り越して蒸発するため、横方向への熱の伝播は効率よく抑制され、厚さ30cmもの厚い板に数mm径の穴を容易に開けることが出来る。この際、電子線を移動させれば切断出来るし、ビーム径をやゝ開いてやれば溶接も可能となる。出来てしまえば、これもコロソブスの卵で、高密度の電子線を当てれば材料は蒸発して、その部分の物質は消失するため、細い穴を深く開け得ることが理解出来るが、通常の電子ビームでは材料が加熱されて溶解するだけという常識を打破るには、余程のチャレンジ精神と努力を必要とする。

次いで、前者の電圧を1000kV以上に上げることによる電子チャンネリングは、更に興味ある現象である。電子の加速電圧を上げると、相対論効果によって電子の質量が増加することは知られている。このことは、電子加速機による電子照射損傷によって確かめられてはいたが、電子がどのように物質内で振舞うのかについては全く不明であり、電子の粒子性と波動性についても、光子のそれと同じく解明困難とされていた。まず、電子の波動性と粒子性の関係について考えてみよう。一般に電圧Eボルトで加速された電子の波長(λ)は、

$$\lambda = h/[2m_0eE(1+eE/2m_0C^2)]^{1/2} \quad (1)$$

で表わされる。この波長は相対論補正を行った

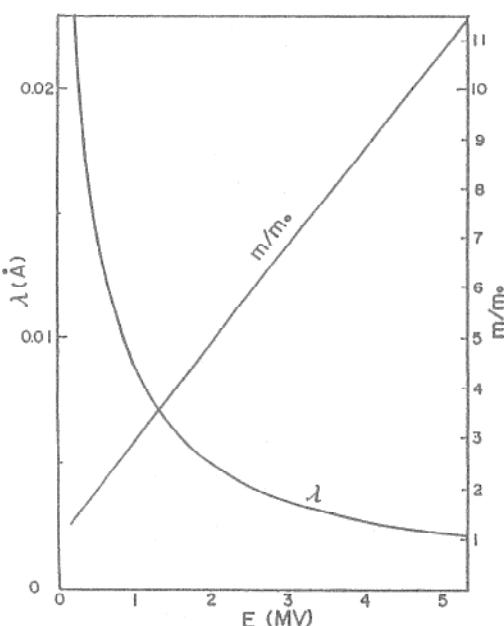


図1 電子の波長と質量の電圧依存性

もので、 $h, m_e, e$  および  $C$  はそれぞれプランク定数、電子の静止質量、電子の電荷および光速である。この  $\lambda$  を(1)式によって計算したものが図1の  $\lambda$  の曲線で、2,000kV(2MV)近傍で電圧の効果が鈍くなることが分る。この  $\lambda$  を電子の物質透過能と関係付けた理論があり、それによると、約300kVの加速電圧あたりからそろそろ透過能は飽和し始め、500~600kVで殆んど飽和の状態となり、例え無限に電圧を上げても100kVでの僅か3.3倍の透過能の増加しかないことになる。筆者が500kVの電顕を手掛けた1963年では、横文字に弱い我が国ではもちろんのこと、世界の人々がこの理論の結果を信じて疑わなかった。ところが、この理論はたゞ1つの波が物質を通過する際には極めてよい近似といえるが、電圧が上昇して多くの波が物質内で励起されると事情が一変する。

まず、電圧を上げると(1)式から  $\lambda$  が減少、即ちエワルド球の半径  $(1/\lambda)$  は増大して球面は次第に平板状に近づく。それと同時に、回折の動力学的效果から各逆格子点は試料面に垂直に伸びることから、同じ場所で同時反射の起る度合(上記エワルド球が逆格子点を切る数)は急激に増加する。この事から、電子の波動性と粒子性を論じたのが図2の筆者のモデルである。

まず、図2で上部より十分高い電圧で加速さ



図2 電子の多波励起と粒子性

れた電子が波長  $\lambda$  の波として結晶に入射したとする。まず最初に、この波に出会った原子は多くの回折面に属しているため、それぞれの回折面で回折を同時に起して、図の矢印の方向に多くの同時反射の波を励起する。続いて、この同時反射を起した波は、結晶中の原子で次々と同様な同時反射を起すために、図の矢印のように結晶の中を透過して行く。この際、 $\lambda$  が長いと、有名なブレッカの関係に従って、一方向のみに強く回折が起り、この後は各構成原子でこの回折と透過を繰返して結晶中に広がる。しかし、電圧が十分高くなると、同時反射の起る度合は著しく強くなるため、或る電圧以上で加速された電子の波は、図2のように、回折を起こした多くの結晶面で円筒のように取囲まれた領域内にとじ込められた状態で、結晶の中を通過することになる。この円筒の直径は原子の大きさの尺度であるため、電圧が十分高くなると、結晶の中で励起された多くの波は、丁度1ヶの粒子のように集中して結晶の中を通過することになる。これが、電子が物質の中で粒子性を示すことの実態と考えられる。以上の結果、電子は稠密な格子面ほど、また稠密な原子配列の方向ほど、それに沿って透過し易く(図の円筒より外へ流れる波が抑制される)なる。この現象が、ブロッホウェーブ・チャンネリングまたは電子チャンネリングと呼ばれるものの本質であると考えられる。ここで、この電子チャンネリングの起る度合を計算してみると、面に沿うもの( $A_p$ )も、結晶軸に沿うもの( $A_a$ )も、何れも電子の質量( $m$ )に比例して次式で表わされることが分る。

$$A_p \text{ および } A_a \propto m \quad (2)$$

この  $A_p$  および  $A_a$  の値は、結晶中で多くの波が同時に励起されると同時に、互に干渉し合って、あたかも粒子のように結晶中を透過することによるもので、電子の物質透過能に相当する。ところで、電子の質量は図1で見られるように、相対論効果によって加速電圧に比例して増加する。このことは、多波干涉による電子チャンネリングを利用(対物絞りをこれらの波が入るよう大きくすることが必要)する場合には、電

子の透過する試料厚さ（電顕で観察出来る試料の最大厚さ）は加速電圧とともに直線状に増加することになる。もちろん、電顕の場合には像を観察しなければならぬので、同一収差の像を得るためにはこの直線関係よりやゝ下回ることになるが、実際に質を同じくした像が観察できる試料の最大厚さは、通常の100kV電顕に較べて、3,000kVでは15～17倍にもなり、前述の悲観的予測に比して遙かに厚い試料が観察できる。そればかりか、図2から分るように、物質を透過する電子線は格子面に沿って進むために、結晶の中でも決して広がらずに真直に進む、という予想もしなかった画期的な効用を發揮する。この筆者が実証した新しい現象は、筆者らが開拓してきた高エネルギー電子を中心とした電子線理工学の根幹をなすものである。

### 3. 電子線理工学によって開かれる 新しい研究分野

電子線理工学とは、既述のように、電子の波動性と粒子性を用いて自然現象の解析・分析・評価などを行う分野と、低電圧電子のリソグラフィを始め、新素材創製から溶解・蒸発に至るいわゆる加工に関する分野とがあるが、こゝでは高エネルギー電子を中心とした分野に限定して述べることとする。

まず、この解析分野のトピックスは、何といっても超高電圧電顕法による現象の電顕内その場実験法であらう。ご承知の通り、阪大の世界最高電圧3,000kVの超高電圧電顕は、筆者ら阪大グループと日立製作所の共同開発によるもので、我が国には未だ1,000kV電顕すらなかった1970年に世界に先駆けて製作、1971年より阪大で使用され始めた画期的な装置である。電顕では使用する電子のエネルギー安定度が最も大切な要素であるが、この安定度を一定に保つ技術的困難度は加速電圧の3乗に比例する。そのよい例が、阪大とゞ同時に唯一3,000kV超高電圧電顕の製作を試みた佛のツールス研究所の場合であらう。同研究所は、古くから佛の誇る電顕のメッカと言われ、有名なジュピィ博士の引率する300名からの人容でこの製作に取組んだ。それにも拘らず、1970年に同じ佛の

グルノーブルで開催された国際電顕学会では、阪大が装置はもちろんのこと、その応用例についても画期的に厚い試料が我々の予言通りに観察できることを発表したのに対して、単に装置の外観のみの発表に止まり、その後も安定した稼動を行えず、遂にリーダーのジュピィ博士は引退された。当時、このツールス研究所は、日本の有名電顕メーカーの先生格であり、日本人はもちろんのこと、ツールスで出来ないものは誰もそれを可能とすることが出来ないと各国で信じられ、別格視されていた。従って、この阪大の成功は世界的快挙であり、日本の電顕技術が世界のトップに躍り出た証明でもあった。ちなみに、我が国内では、1,000kV電顕を最初に設置した名古屋大学でさえ、阪大の3,000kV電顕が完成してから3年後であったことを思うと、如何に阪大の3,000kV電顕が先駆的であったかを知ることが出来る。しかも、その後、現在に至るまで年間約2,000時間を常時2,000kV以上の電圧で運用してきた阪大の実績は、その後に世界各国で設置された1,000kV級電顕の大半が既に更新されていることを考えると、正に驚異の記録と言うことが出来る。この阪大の実績は、目下新しい最高電圧3,500kVの新しい超高電圧電顕の製作へと発展しているが、その他にも、この技術に基づいて世界最高解像度の300kV電顕を完成して、現在に至るまで誰一人として成功していないダイヤモンドの原子像（多波格子像）の撮影に成功してから既に7年。現在、名実ともに阪大の超高電圧電顕センターでは透過型電顕の世界記録を総て保持しているといえる。

以上、世界に誇る3,000kV電顕により、従来、電顕法の最大の欠点と言われた薄い膜状のものしか観察できない問題を一挙に解決した。筆者は既に、電顕内で材料本来のバルクなもの性質を直接再現して、それを原子尺度で連続的に観察する“その場実験法”（in situ experiment）を世界に先駆けて開発しているが、この手法を3,000kV電顕に適用して、実際に広範な研究を行って来た。そのため、電顕内で液体He温度から2,300Kの温度範囲で材料の変形が出来る装置の他、最大3気圧までの液体を

含む任意の雰囲気中で処理の出来る装置、疲労とかクリープ変形の出来る装置など、殆んどの条件を電顕観察下で実現できる装置が完成され、金属とかセラミックスなどの材料を始め、微生物も含む広範な物質中で起る現象について、各種条件下でその場実験を行ない、それら現象の機構と本質を原子尺度で解明して来た。それらの諸結果については、今までに多くの論文、解説などで述べて來たので、それらを参考して戴き、こゝでは電子線理工学の中核となるであろう材料物性の変換または新素材の創製と呼ぶべき分野について触れることとする。

近代科学・技術は、本質的には使用する材料の発達に支えられて來たといえる。日進月歩のエネルギー工学と情報工学はその典型であり、常に新しい材料の開発が要求され、続々と新材料開発の手法が登場している。その代表的新素材といわれるものは、通常地球上に存在しない非平衡相と呼ばれるもので、アモルファス材料、人工超格子、過飽和固溶体、などが代表的なものであり、その究極の手法としては1ヶ1ヶの原子を自分の思うまゝに人工的に配列させて所望の材料を創製することにある。

このような非平衡相を創製する手法を大別すると、(1) 化学的組成は変えずに原子の配列のみを変えるものと、(2) 化学的組成自体を大幅に変化させるものとがある。前者の代表的なものは材料のアモルファス化であり、後者のそれは過飽和固溶体の作製である。ただし、一般に用いられている手法では、この(1)および(2)を明確に区別できるものは少なく、両者の入り混じった手法が多い。こゝで、現在用いられている非平衡相創製の手法を列挙すると、a) 液体急冷法または超急冷法、b) 分子ビーム(MBE)法を含む蒸着法、c) 機械的混合法(メカニカル・ミキシングおよびアロイング)、d) 電着法、e) 中性子照射誘起法、f) イオン注入およびミキシング、g) 電子照射誘起法、h) アトム・クラスターおよびクラスター・イオンを用いる方法を中心とした一種の溶射法、などがある。これらの中で、a), b), c), d), h)などの手法では、極微小領域での処理が難しい。これに対して、e), f), g) の手法では局所処

理が可能という特徴を持っており、超LSIなどの微細処理の必要な電子工学材料にとって威力を發揮する。この中で、イオン注入法は従来広く用いられており、電磁界による絞り込み、正確な照射位置の移動と注入深さの調節などの特徴によって、その応用範囲も広い優れた方法である。ところが、この方法では質量の大きいイオンを用いる関係上、照射による材料の損傷が大きく、しかも比較的浅い深さでイオンは総て運動エネルギーを失うために、発熱による材料の温度上昇が大きい。従って、この欠点を如何に緩和するかがこの方法の最大の課題である。

これに対して、筆者らが開発した高エネルギー電子の照射による異種原子の固体内注入法(EII-FAI法)では、これら、総ての欠点を略々完全に除去できるばかりか、次のような特長をもっており、他の粒子線を用いる手法では不可能に近いことも容易に行える。(1) 数千ボルトに加速された電子の透過力は前述の電子チャンネリングによって著しく増大し、異種原子の種類にもよるが、通常1mm程度の深さまで異種原子を注入できる。(2) イオン化する必要がなく、原理的には如何なる原子も注入出来る。(3) 注入箇所は最小1nm程度まで絞ることが出来るのみか、これも電子チャンネリングによって、材料内でも広がることなく、電子の透過する方向に、図2に示したように、照射面積の断面をもった円筒状に注入される。(4) 電子による材料の損傷は原子空孔および格子間原子が対で形成されるだけである。これらは後の簡単な熱処理で容易に取り除くことが出来るため、照射による質量損失は零に近い。(5) 異種原子の注入は、短距離の原子のはじき出しの繰返しであり、注入時のエネルギー損失の多くは電子と母材原子との相互作用による。従って、注入時の材料の発熱は極めて小さい上に、この注入は通常室温以下で行うために、注入時の温度上昇は殆んどない。(6) この手法での注入は、上述のチャンネリングによる電子の通過経路に沿って異種原子が流れ込むような過程をとるため、照射電子のエネルギーさえ十分なれば、材料の表面からはもちろんのこと、材料の内部の特定の位置からだらうが、円筒形の内部からだらう

が、電子のとどく所であれば、どのような箇所からでも、そこに異種原子源を置けばその注入は容易に行える。この異種原子を材料内の任意の箇所に設置するには、予め蒸着法、電着法、熱処理による析出法、機械的処理などの多くの方法があり、目的に応じて選択できる。(7) 注入深さは、電子の加速電圧、密度、異種原子の種類が決まれば、電子の照射時間(前述のように異種原子は材料内では電子チャンネリングの筒の中を動くだけ)に比例するので、注入深さは正確に制御出来る。(8) 注入された異種原子密度は深さによらずほぼ均一であり、しかも、その密度は電子と材料の条件を制御することによって0~100at%まで変化させることができる。以上のように、このEII-FAI法は画期的な特長をもっており、正に次世代における新素材創製の核となる手法といえるし、材料を損なうことなく、外部から異種原子を材料の任意の位置から所定の位置へ正確に移動させることができるという意味で、材料の“四次元処理法”と呼ぶことも出来る。

さらに、この手法の特徴として、異種原子を用いない場合には、構成原子の拡散を低温で阻止することによって材料の原子配列を容易に変え得ることである。その代表的例が結晶のアモルファス化である。このアモルファス(正確にはアモーファスと呼ぶべきであらうが慣例上このように表現する)化の研究は古くから多くの人々によって研究され、新素材の“はしり”として興味を持たれたが、最近ではアモルファス金属の創製も可能となり、その特異な物性から益々注目されている材料である。但し、従来のアモルファス材料の製作には超急速法が主流であった関係上、製造過程の制御が難しく、その系統的研究のみならず、物性の基本となる原子構造の研究も十分行うことが出来なかった。これに対して、高エネルギー電子照射を用いる上記の方法では、原子構造を結晶の周期構造から完全に周期構造の乱れた段階まで変化させることを、電顕で観察しながらその場(*in situ*)で行える。この方法では、試料の温度および電子線の条件は極めて正確に制御出来るため、この手法に経験のない人にとっても常に再現性よく、

超急速などの他の手法ではアモルファス化しない材料についても正確にアモルファス化の可否を簡単に確かめることが出来る。

その結果、この手法によってアモルファス化の3原則が確かめられ、アモルファス化可否の予言が可能となった。このアモルファス化については、従来数多くの研究者によって種々の提案がなされているが、それを総括すると次の条件が満たされるとアモルファス化することになる。(1) 構成原子の原子径の大きいこと、(2) 融点または変態温度の高いこと、(3) 構成原子が互に固溶度の少ないこと、(4) 結晶構造が複雑な、または単位胞の大きいこと、(5) 構成原子の電気陰性度の差が大きいこと、などである。ところが、今迄の研究では、理論的予測が困難であった関係上、既にアモルファス(ガラス)化が確かめられているものを選択して、それを中心に上述の諸因子の寄与を確かめて来た。しかし、アモルファス化の過程自体の制御が難かしいために、それらの結果からアモルファス化の原則を見出すことは非常に困難であった。これに対して、筆者等の手法ではアモルファス化過程を正確に制御出来るため、アモルファス化の原則を確かめることが出来た。その結果、上述の因子は何れもそれ自体は必ずしもアモルファス化の目安とはならず、次の3原則が満たされた時にのみ、2次効果としてアモルファス化に寄与するだけであることが確かめられた。その3原則とは、まず、(A) アモルファス化は結晶径が或る臨界寸法(マジック・サイズと称する)以下に分割された時に起る。(B) 構成原子の中の少くとも1ヶは、複数の結合モード(配位数)を同時に持たねばならない。この条件が満たされた時、構成原子が周期律表の上で離れる(電子構造の差が大きい)ほど、アモルファス化は容易になる。(C) 配位数の変化による原子間距離の変化が大きいほど、アモルファス化は容易となる。この3原則は、金属を含む総ての材料に適用され、金属材料をH<sub>2</sub>とかO<sub>2</sub>などのガス反応によってアモルファス化(このことに関しても阪大超高電圧電顕センターは世界の先端を歩んでいる)にも適用され、殆んど総ての材料について、そのアモルファス化の可否

を予測出来る。

以上は、僅か数例であるが、高エネルギー電子を用いた電子線理工学は、従来用いられた手法からでは予測も出来ない材料処理が容易に可能となり、正に次世代における新素材創製の核となるべきものと考えられる。紙面の都合上、実例についての詳細は省略したが、それぞれの原論文または解説を参照（阪大超高電圧電顕センターへお問い合わせ頂きたい）願えれば幸甚である。

### おわりに

この稿では、筆者が関係して来た電子線理工学にのみ限定しましたが、阪大で生まれた新しい研究分野の一端を理解戴けたと思います。阪

大は、創造の府であるべき大学として最も優れた大学であると確信していますが、筆者らの超高電圧電顕以外に、学内では超高圧、超高温、超強磁場など、宇宙における物質創製に必要な極限条件を実現出来る世界的にも優れた諸装置が稼動しています。これらの諸装置を組合せ、併せて阪大における伝統の物質解析手法を附加した時、阪大は新材料創製の世界におけるメカとなることは必定です。今後は、国際的に我が国も知的財産の創生を第一に考えねばなりませんが、上述のような条件を備えている阪大が、材料科学におけるセンター・オブ・エクセレンシィとして発展することを切に期待して稿を終ります。

