

氷の構造・電子状態解析のための 極低温超高真空透過型電子顕微鏡の開発

香内 晃¹、渡部 直樹^{2,3}、日高 宏¹、羽馬 哲也²、中坪 俊一⁴、藤田 和之⁴、
新堀 邦夫⁴、池田 正幸⁵

1. 雪氷新領域部門宇宙雪氷学分野
2. 雪氷新領域部門宇宙物質科学分野
3. 共同研究推進部
4. 技術部装置開発室
5. 技術部共通機器管理室

はじめに

香内他(2009)では、開発中の超高真空・極低温透過型電子顕微鏡の仕様を紹介した。その後、超高真空透過型電子顕微鏡本体は日本電子での製作が完了し低温研に設置された。それと並行して、低温研で電子顕微鏡本体に取り付けるさまざまな部品の開発・製作を進めてきた。本稿では、その現状や問題点を報告する。

超高真空透過型電子顕微鏡本体

電子顕微鏡本体は、まずターボ分子ポンプで排気し、続いてイオンポンプおよびチタン・サブリメーションポンプで本排気をおこなう。試料周辺の真空度向上のため、二組の液体窒素シュラウドがついている。この状態で、 1×10^{-9} Torrの真空度を達成した。分解能は、80–200 kVで0.14nmを達成している。また、試料を透過した電子線のエネルギー分析ができるイメージング・フィルター（詳細は香内他、2009を参照）も装備されている（図1）。

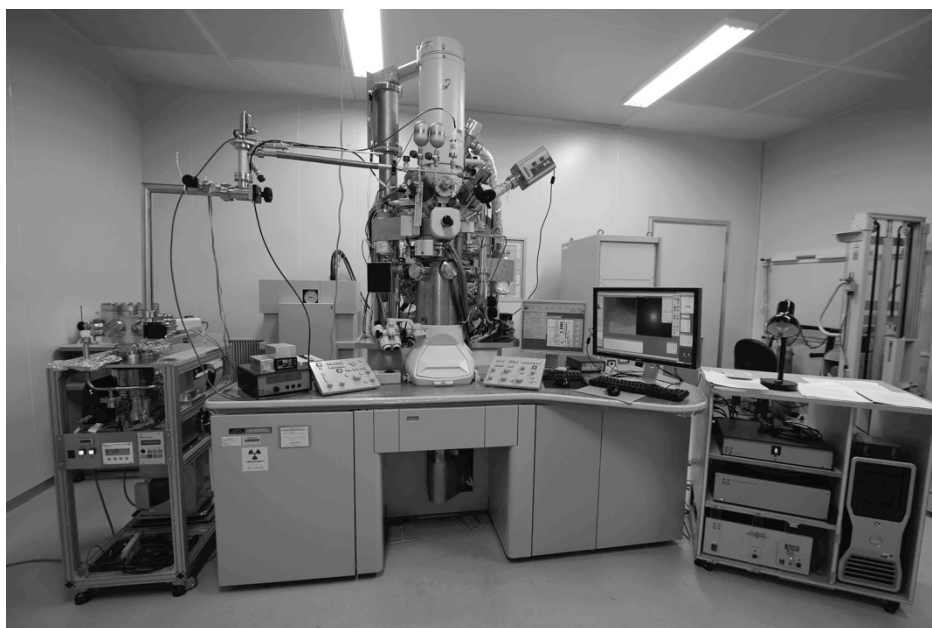


図1 超高真空・極低温透過型電子顕微鏡の全景。

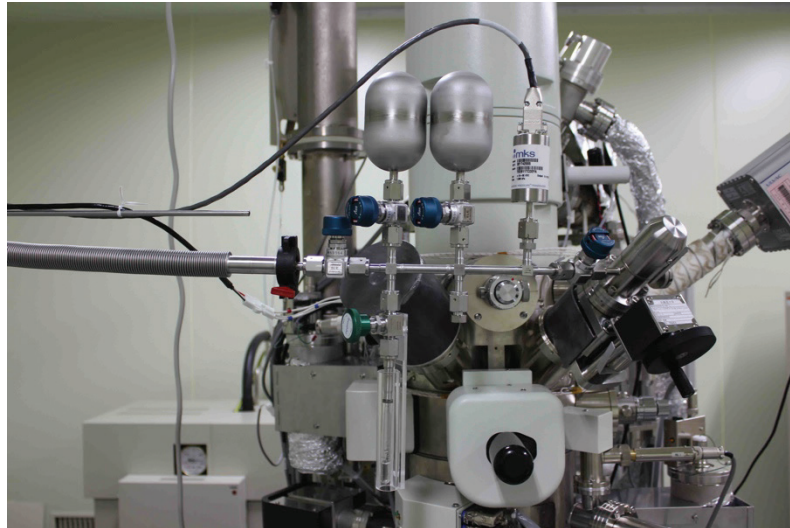


図 2 ガス導入系およびガス混合系。左側が真空排気用フレキシブルチューブ。



図 3 チタン製ガス導入パイプ

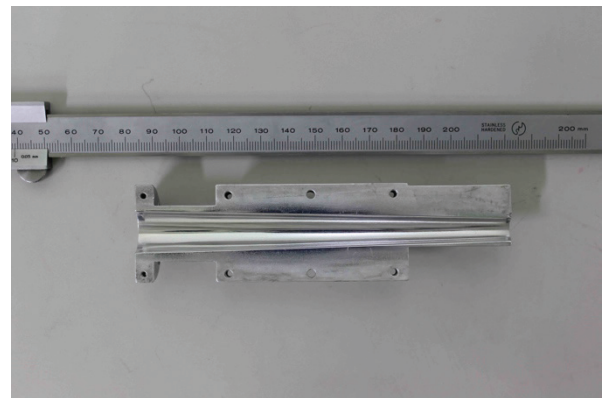


図 4 純アルミニウム製紫外線ガイドパイプ。鏡面研磨面に研磨剤がめり込み使用できなかった。

付属部品の開発

ガス導入機構

氷を作るためには、水蒸気や他のガスの導入機構が必要になる。図 2 はガス混合系およびガス導入バルブである。通常は、ガスを試料基板付近に導入するためにステンレス製のチューブを用いている。しかし、電子顕微鏡では、試料基板の上下にはポールピースと呼ばれている強い磁場を作っているレンズがあり、磁性体のパイプは使用できない。一般にステンレスは磁性を持たないが、加工時に磁化することがあり、ポールピース周辺では使用することはできない。そこで、チタン製のガス導入パイプを外注で作製した（図 3）。外径 1 mm のパイプを絞ることによって外径 0.6 mm のパイプを作製した。ガス導入系と真空排気装置の間は、肉厚 0.15 mm のフレキシブルホースでつなぐことにより、真空排気系の振動を除去した（図 2）。この状態でも、0.14 nm の分解能を達成している。また、真空排気装置も磁気浮上型のターボ分子ポンプを用い、さらに、荒引き用の油回転ポンプの振動がターボ分子ポンプに伝わらないような工夫を施した。

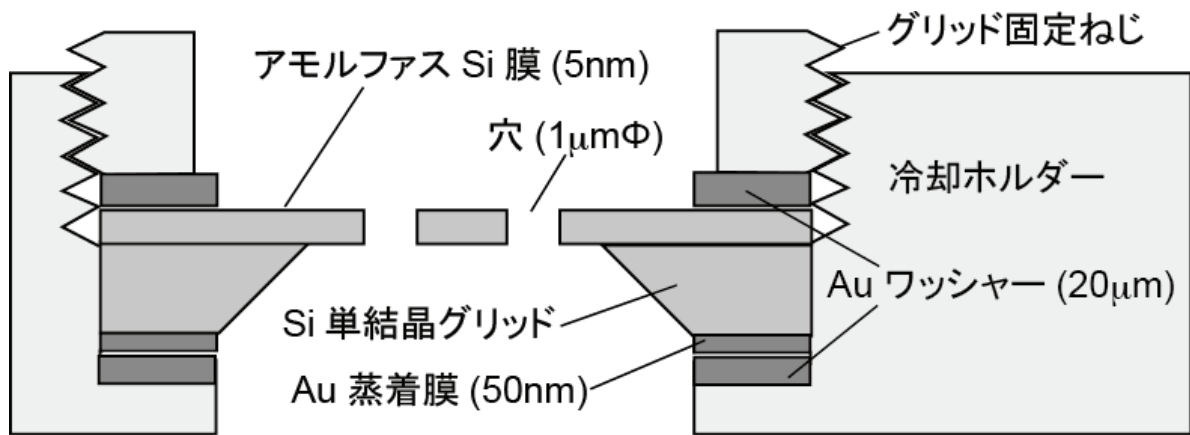


図5 シリコン単結晶グリッドと冷却ホルダーへの取り付け法。

紫外線ガイド

氷に紫外線を照射するためには、市販の重水素ランプを用いるが、紫外線が試料以外の部分に照射されないようにするためのライトガイドが必要である。形状は長さが15cm程度のロート状のパイプであり、両端の直径は、それぞれ15mm、3mmである。紫外線を集光するためには、このロート状パイプの内面を鏡面研磨する必要がある。波長200nm以下の紫外線の反射率が大きな材料は、ほぼ純アルミニウムに限られる。純アルミニウムは柔らかいため鏡面研磨は難しく、超音波洗浄により研磨剤が純アルミニウムにめり込んでしまった。その結果、真空度が上がらなくなり、低温研での製作を断念した(図4)。結局、ロート状のパイプは、金型を作り、それに合わせて叩きだして作製し、内面は複合電解研磨をおこなった(いずれも外注)。重水素ランプの外側は鉛板で遮蔽した。

氷作製用基板薄膜

氷を作製するための基板となる薄膜は、氷の主成分である酸素原子よりできるだけ軽く、しかも熱伝導率の大きなベリリウムが理想的である。しかし、諸々の規制のため、国内でベリリウム薄膜を製作することはできない。そこで、次善の策として、市販の薄膜で最も薄い(コントラストの弱いイメージ)5nm厚のシリコン薄膜を使用することにした。このシリコン薄膜は穴のあいたシリコン単結晶グリッド上に載せられ、シリコン薄膜の上に氷を作製することになる。図5に示すようにシリコン単結晶と液体ヘリウム冷却ホルダー間の熱伝導を良くするために、シリコン単結晶グリッドの下の面に金をリング状に蒸着するとともに、シリコン単結晶グリッド上下に厚さ20μmのリング状の金箔を挟み込む(藤田、2012参照)。なお、イメージング・フィルターの調整(軸合わせ)のため、シリコン薄膜に収束イオンビーム加工により、直径1μm程度の穴を開けた。

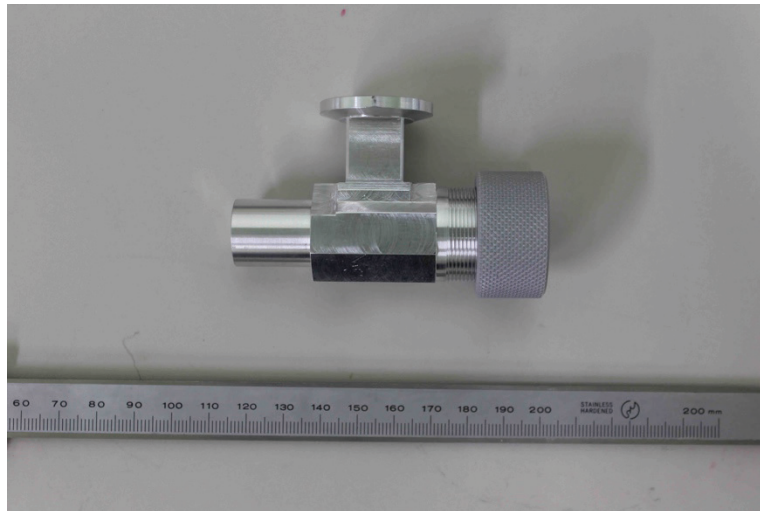


図 6 液体ヘリウムホルダー用軽量排気バルブ。

液体ヘリウムホルダー

上記基板薄膜を冷却するために、Gatan 社製の液体ヘリウムホルダーを用いた実験を始めた。しかし、以下に記すような種々の問題が明らかになった。液体ヘリウムの保持時間が 1 時間程度であり、基板薄膜の冷却後、氷凝縮を始めたところで液体ヘリウムがなくなってしまい、実験にはほとんど使用できない。温度調整範囲は 5–20 K であり、より高温で一定温度を保持する実験はできない。さらに真空漏れもひどく、液体ヘリウム容器表面に霜ができてしまい、ほとんど使い物にならない。現在、本来の使用法ではないが、軽量の真空排気用バルブを作製し（図 6）、真空を引きながら使用している。

おわりに

上記液体ヘリウムホルダーに関する諸問題を解決するために、現在、冷凍機を用いた冷却システムの開発に取り組んでいる。これらの問題は冷凍機の振動をいかに減らすかであり、種々の除振対策が鍵となる。

参考文献

香内 晃、日高 宏、渡辺 直樹 「超高真空・極低温氷作製透過型電子顕微鏡の紹介」北海道大学低温科学研究所技術部技術報告、**15**、3–4、2009 年 12 月。

藤田 和之 「打ち抜きによる Au リングの製作」北海道大学低温科学研究所技術部技術報告、**18**、29–32、2012 年 12 月。