

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630297

研究課題名(和文)高電圧微小放電溶接による高輝度フィラメントの作製

研究課題名(英文)Fabrication of High Luminance Filament by Non-contact Discharge Welding

研究代表者

今野 武志 (KONNO, Takeshi)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端材料プロセスユニット・主幹研究員

研究者番号：50354171

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高電圧微小放電溶接法により、線径50 μm のタングステン及びタングステン合金細線を溶接し、熱電子放出フィラメントを作製することに成功した。このフィラメントは、走査電子顕微鏡(SEM)に一般に利用されているヘアピンフィラメントより先端半径が小さく、高輝度な電子線源となることが予想される。そこで、作製したフィラメントをフィラメント用台座に溶接し、SEMの電子線源とし、実際のSEMに取り付けて画像観察を行い、ヘアピンフィラメントを用いた場合との比較を行った。その結果、試作フィラメントで撮影するほうが良好で奥行きのはっきりした画像を得られることが示された。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have successfully fabricated tungsten filament for thermion emitting electron guns. Two tungsten/tungsten alloy wires of 50 μm were welded by non-contact discharge welding method and make a reversed V shape structure. The point radius was smaller than that of the common hairpin filament. It will, therefore, expect to show a good thermal electron emission property. The reversed V shape structure was mounted to an SEM instead of hairpin filament. Good images were obtained comparing with those taken by the same SEM mounted a common hairpin filament.

研究分野：工学

キーワード：電子・電気材料
SEM
材料加工・処理 微小溶接 グロー放電 マイクロ・ナノデバイス 高輝度フィラメント

1. 研究開始当初の背景

走査電子顕微鏡 (SEM) は、研究の一般的な観察道具となっている。さまざまな種類の SEM があるが、安価で操作が容易ということから、電子線源に熱電子放出型のヘアピンフィラメントを持つものが最も使われている。

図 1 は電子線の経路を示す模式図である。フィラメントから発生した電子線はウェネルトの下方で絞られてから、開き角(α)で広がる。最も絞られたところはクロスオーバーポイントと呼ばれ、光学顕微鏡の光源に相当する。SEM は電子線の輝度(B)が高いほうが性能は良くなる。この輝度は、開き角やフィラメントの先端半径と式(1)および(2)の関係で結ばれている。

$$B = I / (\pi r_c^2 \cdot \pi \alpha^2) \quad [A/cm^2 \cdot rad^2] \quad (1)$$

$$\alpha = r_0 / f \quad (2)$$

B: クロスオーバーポイントにおける輝度,
I: 単位立体角度あたりの電流密度, r_c : クロスオーバーポイントにおける集束半径,
 α : 開き角, r_0 : フィラメントの先端半径, f: 先端の局率中心からクロスオーバーポイントまでの距離

上式より、先端半径が小さいフィラメントほど輝度が向上することがわかる。ところがヘアピンフィラメントは、細線を U 字状に折り曲げて形成するので先端半径をある程度以上に小さくすることはできない。そこで、先端半径を小さくするためにさまざまな改良型フィラメントが開発されている。

図 2 は改良型フィラメントを示す模式図である。これらはヘアピンフィラメントの先端部に機械加工や電解研磨や針状部材の溶接などを行い、先端半径を小さくしている。しかし、いずれもヘアピンフィラメントから出発して、加工を加えるため、作製が容易でなくコストがかかるという問題がある。

一方、我々は微小溶接法の 1 つとして、高電圧放電溶接法を開発している。この方法により線径 50 μ m のタングステン(以後 W と表記する)合金線を接合して、超高温用の極細熱電対を作製している。この技術を応用すると、折り曲げではなく、溶接のみの 1 工程で先端半径が小さなフィラメントが作製でき

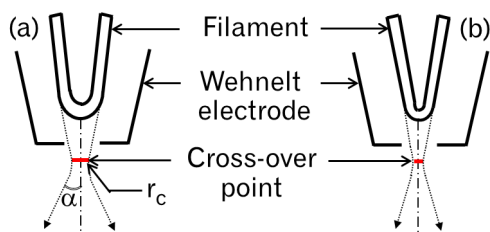


図 1 電子線の経路を示す模式図
(a)ヘアピンフィラメント, (b)高輝度フィラメント

るのではないかと考えた。

2. 研究の目的

本研究では、汎用 SEM のための高輝度な電子線源となる溶接型フィラメントの作製とその評価を目的としている。すなわち、高融点金属極細線を高電圧放電溶接法により溶接し、先端半径がヘアピンフィラメントよりも小さな逆 V 字形の接合体を作製する。この接合体を、ヘアピンフィラメントの代わりに台座に取り付け、熱電子放出型の電子線源とし、その性能を評価する。

3. 研究の方法

(1)溶接装置

高電圧放電溶接法は、大気圧下で先端を尖らせた金属針に kV オーダーの高電圧を印加してパルス放電を起こさせ、数十 μ m オーダーの金属粒子や極細金属線を溶接する。極細金属線を溶接するには、図 3 に示す装置を用いる。

図は溶接装置の主要部分を示したもので、2 本の極細金属線を取り付ける 2 枚の金属基板は、電動ステージによりそれぞれが独立に 3 方向に移動可能である。その上方には垂直に固定した金属針を配置し、針の尖った部分は下向きとする。図示していないが、金属針の先端に焦点を合わせた 2 台の実体顕微鏡 (ライカ製, MZ16) で、正面と横の 2 方向から観察できるようにしている。顕微鏡に 3CCD カメラ (ソニー製, XC-003) を接続し、モニター画面上で金属針と金属細線の位置関係が精密に把握できるようにしており、さらに画像はビデオレコーダーに記録した。定

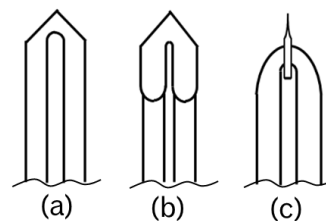


図 2 改良型フィラメントを示す模式図
(a)ポイント, (b)シャープド, (c)セミポイント

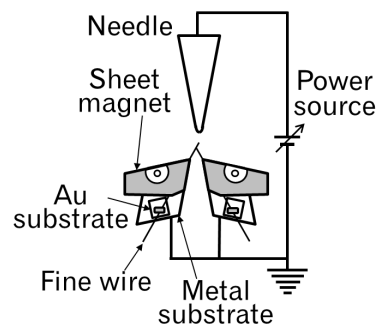


図 3 溶接装置正面の主要部分

格が 10kV, 10mA の高電圧電源 (エレメント製, EKM-10K10PLS1) を用いて, 金属針と溶接対象部間に高電圧を印加した. 溶接領域をシールドするため金属針の上方から内径 8mm の金属チューブを介して, 予熱した CO₂ ガスを噴射できるようになっている.

(2) 供試材

供試材は超高温用の極細熱電対作製に利用した線径 50 μ m の素線で, 純 W, 3%Re-W 合金, 26%Re-W 合金を用いた. 金属針は純 W 製で, 軸径 0.66mm で, 先端半径が 5, 12, 25, 50, 70 μ m のもの, 及び軸径 1mm で, 先端半径が 100, 200, 500 μ m のものを用いた.

(3) 溶接方法

図 3 に示すように, 約 80mm の長さに切断した 2 本の素線を, それぞれ厚さ 1.5mm の金属基板上に載せ, その一端が基板上端の角から約 2-5mm 突き出るようにし, 板磁石で固定する. 電動ステージを操作して, 金属針先端の下方数十 μ m の位置で, 素線の先端が所定の角度で突き合わせるように接触させる. 予熱した CO₂ ガスを 0.33m/s で, 金属針直上から噴射しながら, 金属針と極細金属線間に高電圧を印加する. 金属基板はアースしてあり, 金属基板と極細金属線は同電位であるので, 金属針に高電圧を印加すると, 金属針と金属針に近い素線先端の間で放電が生じる.

(4) 溶接条件の検討

2 本の素線の突合せ角度, 放電時間, 突合せ位置, 素材の選択等について調べ, 最も適切な溶接条件を検討した.

(5) SEM 観察

フィラメント形状

孔径 2mm の標準ウェーネルトにヘアピンフィラメントおよび作製したフィラメント (以下では試作フィラメントと呼ぶ) をそれぞれ取り付けて電子線源とし, 標準試料 (ZnO) の同じ視野を同一条件で撮影して比較した.

ウェーネルト形状

標準ウェーネルト, 孔径が 1mm, 0.8mm, 0.5mm の試作ウェーネルトに試作フィラメントをそれぞれ取り付け, 画像の比較を行った.

ビーム電流

金属製の筒状電極であるファラデーカップ (EM ジャパン製, S154B) を用いて, SEM の電子線のビーム電流をヘアピンフィラメントと試作フィラメントについて, それぞれ求めた.

寿命

20kV で 1 時間 (以後 h と表記する) 電子ビームを出してから短時間休止して大気導入というサイクルを繰り返し, フィラメントが切れるまでの積算時間を調べた.

4. 研究成果

(1) 溶接条件

突合せ角度の検討

図 4(a) は実験に用いた SEM (JEOL 製, JSM-5310 型) 用電子線源である.

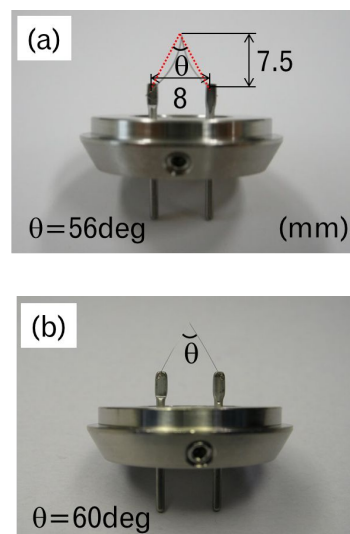


図 4 台座とフィラメントの位置
(a)ヘアピン, (b)試作品

ヘアピンフィラメントの 2 本の脚が, 台座のステムと呼ばれる 2 本の金属棒にそれぞれスポット溶接されている. 台座のステムの間隔は 8mm, フィラメント先端とステムの上端までは 7.5mm である. フィラメントと電極間が直線であると仮定すると, 56° となる.

本研究では素線同士の突合せ角は 60° とした. なお, 図の (b) は突合せ角 60° で溶接した接合体を, ヘアピンフィラメントを接合している専門業者に依頼してステムにスポット溶接したものである.

本研究で用いた SEM は, 電子線源をウェーネルトに装着するだけでフィラメントの先端がウェーネルトの孔の中央に位置するようになっている. 試作フィラメントをウェーネルトに装着して, 光学顕微鏡で調べたところ, フィラメントの先端は孔のほぼ中央に来ていた.

素線の突合せ方

2 本の素線の先端の高さを同じにして突合せて溶接すると, 図 5(a) のようになった. 2 本の素線は溶接できたが, 接合部はほぼ水平となり, 先端半径は小さくならない. また, 溶接部近傍の左側素線が右側に較べ細くなっている. そこで素線先端の高さを同じにせずに, 一方の先端を他方の素線の先端より数十 μ m 下方の部分に突合せてから溶接した. その結果が図 5(b) であり, 溶接部近傍の素線がやせる傾向にあるが, 溶接の先端部は小さく, その先端半径は約 20 μ m である.

したがって, 2 本の素線先端の高さを同じにせずに突合せ溶接すると, 先端半径が小さなフィラメントが得られることがわかった.

放電時間の影響

超高温用の熱電対の作製では, 素線の突合せ角は 20° 以下で 0.3 秒 (以後 s と表記する) 以上の放電を 1 回加えると, W または Re-W 合金素線を溶融接合させることができた.

本研究では素線の突合せ角を 60° とし,

種々の条件で 0.3s の放電を 1 回加えた。例えば図 6(a)のように、金属針の先端半径 50 μm 、金属針と素線間の非接触距離を 75 μm として 0.3s の放電を 1 回加えた。その結果、図(b)のように、溶接後、両方の素線が約 300 μm 消失して短くなり、接触していた 2 本の素線は離れてしまった。

溶接に適した放電時間について検討した結果、突合せ角が 60 $^\circ$ であると 0.3s の放電では溶接できず、0.02-0.05s の短時間の放電を繰り返すことにより、溶接が可能となった。なお、放電の繰返し回数は 10 回以下である。

素材の検討

本研究で用いた素線のいずれも溶接ができた。図 7 は素線の溶接結果で、(a)純 W、(b)3%Re-W 合金、(c)26%Re-W 合金を示す。すべての線種で溶接部の先端半径は約 20 μm と、ヘアピンフィラメントの先端半径 200 μm に比べ、先端が尖った状態で作製できた。

純 W は、(a)で示されるように素線が先端に近づくに従って細くなっており、溶接部の近傍で最も細くなっている。同じような傾向は(b)、(c)の 3%Re-W 合金と 26%Re-W 合金でも見られているが、細くなる程度は少ない。いずれの例でも左側素線が特に細くなっている。この理由は不明であるが、左右のアース電位のわずかな違いなどが関係している可能性がある。また針状に細くなる現象は、これまで本溶接法で溶接を行った金線や K、B、T の熱電対の各素線では起きていない。

純 W のフィラメントは、左側の痩せた線と接合部の境界での強度が弱いと考えられるので、それ以外の 2 線種について、それぞれ台座にスポット溶接して SEM の電子線源用のフィラメントを試作した。

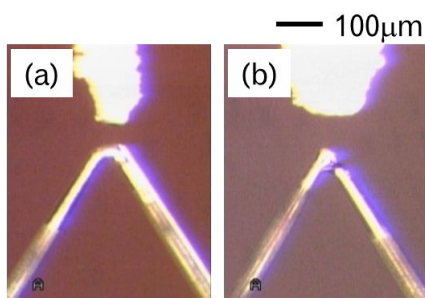


図 5 突合せ位置の影響
(a)先端を一致させた、(b)先端をずらした

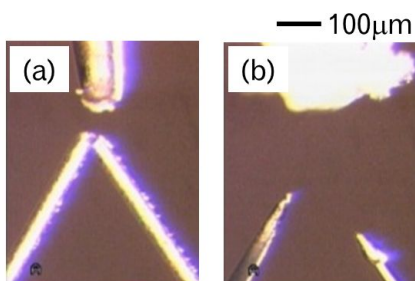


図 6 放電時間の影響
(a)放電前、(b)放電後

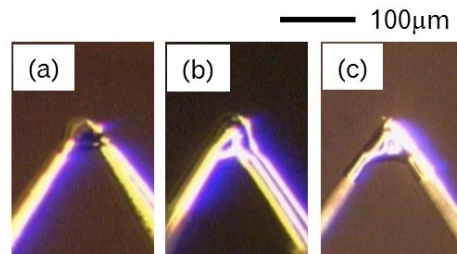


図 7 素材の影響
(a)純 W、(b)3%Re-W、(c)26%Re-W

図 7(b)は、3%Re-W 線で作ったものである。26%Re-W 合金線を電子線源として利用すると、熱により、素線が軟化してしまう。そのため、電子線の発生源であるフィラメント先端が電界の影響により揺らぎ、画像の観察ができなかった。一方、3%Re-W 合金線は加速電圧 30kV にしても、明瞭な画像が得られ、画像の乱れは起きない。したがって、今回試験した素材の中では 3%Re-W 合金線が最もフィラメントに適していることがわかった。

金属針の先端半径

極細熱電対の作製では、先端半径 5 μm の W 針を使っていた。W 針の先端は放電とともに太くなり、先端は鈍化していくので、先端半径が 25 μm 程度になると新品の針と交換していた。一方、フィラメント作製では、金属針の先端半径が 5-500 μm のものについて検討し、12-100 μm の範囲にある金属針が溶接に適していることを見いだした。5 μm の針は、放電を数十回繰り返すと、先端部分が太くなり、先端部が不規則な形状に変化し、溶接後の離間距離が大きくなる。また、先端半径が 200 μm を超える針を用いて溶接を行うと、放電の炎が不安定となり、溶接の制御が難しく、溶接を失敗することが多くなる。

(2)SEM 観察

試作フィラメントによる撮影画像

図 8 は孔径 2mm の標準ウェーネルトに試作フィラメントとヘアピンフィラメントをそれぞれ取り付け、ZnO 標準試料の同じ視野を同一条件(加速電圧:20kV、倍率:10,000 倍、スポットサイズ:SS08)で撮影した画像の結果を示す。ロードカレント(以後 L.C.と表記

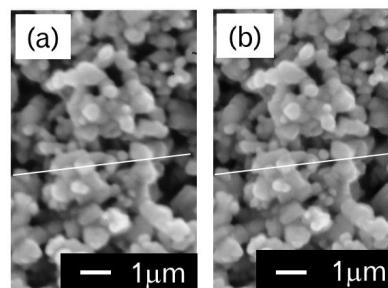


図 8 SEM 画像
(a)ヘアピンフィラメント撮影像、
(b)試作フィラメント撮影像

する)はどちらも $53\mu\text{A}$ であり、フィラメントによる差異は認められない。ただし、L.C. は SEM 装置で表示された値であり、直接測定した値ではない。2 枚の画像の画質を比較すると、試作フィラメントで撮影した方が焦点が良く合っており良好である。これはフィラメントの先端半径が小さく、絞られた高輝度な電子線で走査できるからと思われる。図 8 では定性的にはほぼ予想通りの結果が得られた。すなわち、試作フィラメントを用いると電子線源の輝度が高くなったと推定される。SEM のヘアピンフィラメントを、試作フィラメントに交換するだけで画質が向上するということである。また SEM だけでなく、EPMA 等の電子線源を使った分析において、分析精度が向上すると思われる。

画像解析ソフトによる撮影画像の解析

画質の違いは人間の主観的な判断によっている。図 8(a)と(b)の画質の違いは、肉眼では明らかであるが、その違いを客観的な数値で表すことができれば、今後、試作フィラメントを利用する際にウェーネルトの形状や孔径の最適化などに有用である。そこで試験的に画像解析・計測ソフト(WinROOF2013)を用いて、図 8 の白線部分の明暗の強度分布をそれぞれ調べた。図 9 はその結果を示す。横軸は白線の始点から終点の位置、縦軸は高いと明るいことを意味する。山側の領域で、2 本の線が一致している箇所が多く、図 8 で示した SEM 画像のコントラストと明るさはほぼ同じである。谷側で黒い線が薄い線より上側に位置している。電子線が細く絞られるので、焦点深度が深くなり、穴等の奥行き方向の情報がわかる程度に明るくなっている。この違いが、単に写真の画像処理によりなくなるものではないことを示すために、図中 A、B の位置で、黒い線と薄い線の高さが一致するように、縦方向に拡大引き伸ばして規格化し、AB 間の変化の部分の傾斜を計算した。試作フィラメントはヘアピンフィラメントと比較して約 11%勾配が急峻になっている。すなわち、コントラストがシャープに変化している。これは電子線が細く絞られるので、試料表面形状の変化をより正確に追従できていることを示唆している。今後は、コントラストの変化が確実にシャープな、例えば垂直に切り立ったような形状の試料を観察して比較する必要がある。

L.C.とウェーネルトの孔径

使用している SEM のウェーネルトは、ヘアピンフィラメント用に設計されたもので、試作フィラメントとの組み合わせでは、必ずしも最適とは言えない。最適なウェーネルトを設計することは限られた時間では無理なので、ここでは標準のウェーネルトの孔径だけを変えたものを用意して、まず L.C.に及ぼすウェーネルトの孔径の影響を調べた。

(2)項 では孔径 2mm の標準ウェーネルトに試作フィラメントとヘアピンフィラメントをそれぞれ取り付けた。L.C.はフィラメン

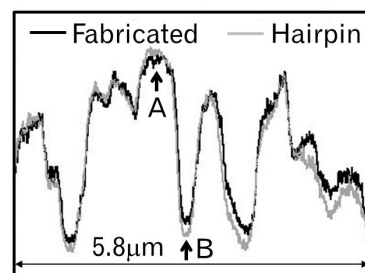


図 9 SEM 画像の濃度分布

ト形状に関係なく $53\mu\text{A}$ と同一であった。しかし、試作フィラメントを使用して観察を行うと、1.5h で溶接部近傍の素線が溶損して使えなくなった。試作フィラメントはヘアピンフィラメントに比べ、断面積が $1/16$ 、先端半径は $1/10$ と小さくなる。フィラメントに対して、ウェーネルトの孔径が大きくなることから、試作フィラメントへの負担が大きくなって、溶損しやすくなったと考えられる。孔径 1mm のウェーネルトに試作フィラメントを取り付けると、電子線照射時の L.C.は $30\mu\text{A}$ で、孔径 2mm の標準ウェーネルトの約 $1/2$ となり、L.C.はウェーネルトの孔径に依存することがわかった。しかし、ウェーネルトの孔径が 0.8mm になると、加速電圧が 5kV 以下でも、2 次ピークは出現せず、SEM 画像が得られなかった。観察後にフィラメントを取り外すと、ウェーネルトの内面にカーボンの付着が認められた。孔径が小さくなると、フィラメントとウェーネルト間に放電が発生し、SEM 画像が得られないので、L.C.が上昇しない。本研究では、試作フィラメントに適したウェーネルトとして、孔径 1mm のものを採用した。

ビーム電流量

フィラメントの先端半径が大きくなれば、電子線は太くなり、ビーム電流は増加するはずである。本項ではファラデーカップを用いて実際のビーム電流を測定した。ファラデーカップはイオンを電流として直接計測するためのカップ状金属電極である。

ビーム電流量の測定は加速電圧 20kV、観察倍率 5,000 倍、 $\text{ICL}=161\text{mA}$ (スポットサイズ SS08)、作動距離(対物レンズ下面から試料までの距離、以後 WD と表記する)は 12mm である。試作フィラメントと孔径 2mm の標準ウェーネルトの組み合わせでのビーム電流量は 14pA 、試作フィラメントと孔径 1mm のウェーネルトでは 6pA であり、ビーム電流量がウェーネルトの孔径に依存することがわかった。また、先端半径 $200\mu\text{m}$ のヘアピンフィラメントと標準ウェーネルトの組み合わせの場合、ビーム電流は 111pA である。試作フィラメントと孔径 1mm のウェーネルトでのビーム電流量はヘアピンフィラメントと孔径 2mm の標準ウェーネルトの組み合わせに比べ約 $1/20$ となり、少ないビーム電流量でフィラメントへの負担が小さく、高解像な

画像が得られることがわかった。

試作フィラメントの寿命

試作フィラメントを用いると、ビーム電流量が非常に小さくなることを確認した。

ヘアピンフィラメントの平均寿命は約 50-100h とされている。図 2(c)に示すような、先端部にチップを取り付けたフィラメントの場合には、平均寿命は 10-20h しかない(特願 H09-224582)。本研究では試作フィラメントの寿命を検討するため、孔径 1mm のウェーネルトを用いて、加速電圧 20kV で通常の画像が見えるように調整して 1h 電子線を発生させる。電子線を停止後、5分(以後 m と表記する)間待ってから大気導入を行う。この電子線発生から大気導入までの操作を繰り返して、フィラメントの寿命を調べた。その結果、積算時間で 51h の電子線を出しても、フィラメントが溶断することはなかった。寿命が充分であることがわかったので、この時点で寿命を調べるのを中止した。寿命が予想よりも長かったのは、ファラデーカップを用いたのビーム電流量が、6pA と少なかったためと思われる。試作フィラメントを開発した当初、寿命は 1 日の作業時間となる約 8h 程度を目標としていた。実際には線径の細いフィラメントになると、ビーム電流量が小さくなるため、ヘアピンフィラメントと同等な寿命が得られることがわかった。

図 10 は溶接直後の試作フィラメント形状を示す。(a)図は低倍率の画像、(b)図は高倍率の画像である。(a)図で示した画像で、溶接後の素線は軸部から溶接部近傍まで細くなる傾向であった。さらに、(b)図で示した拡大像において、四角形や六角形の粒界と見られる組織が認められる。Re-W 合金が溶接後の急激な冷却で、組織の再結晶が起こった。

図 11 は、上記のサイクル、すなわち 1h の電子線照射後に 5m 休止して大気導入というサイクルで 51h 使用した後のフィラメントを示す。フィラメント全体がやせ、特に溶接部表面は結晶粒と同等の大きさで凸凹している。溶接直後のフィラメント先端半径は約 9 μ m で、電子線照射後の先端半径は約 2 μ m となり、先端がさらに尖った形状となった。次に、1h の電子線発生後の休止時間を 30m と真空中で十分に冷却してから大気導入を行った場合、および、休止後に大気導入を行わなかった場合についてそれぞれ検討した。休止時間が 30m で大気導入した結果、溶接部表面は図 11 と同じように凸凹している。図 12 は真空を保持した状態で電子線の発生と休止を繰り返した結果で、積算使用時間は 68h 以上で、フィラメントは溶断していない。溶接部表面はなめらかな状態である。大気導入の有無で、フィラメントの表面組織に影響が出ることがわかった。仮説ではあるが、SEM 中に大気を導入すると、フィラメント表面に酸素が吸着し、その後で電子線を発生させると、酸化被膜となり粒界近傍が選択的に昇華し、粒界腐食に類似した現象が起きてい

ると考えられる。

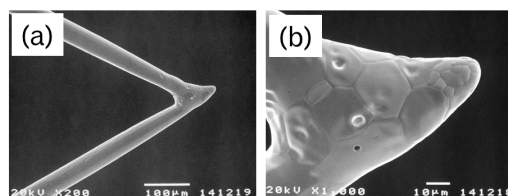


図 10 溶接直後の試作フィラメント
(a)全体像、(b)溶接部拡大

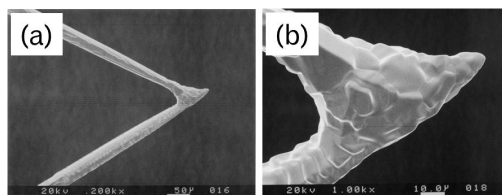


図 11 電子線 51h 照射後のフィラメント
(a)全体像、(b)溶接部拡大

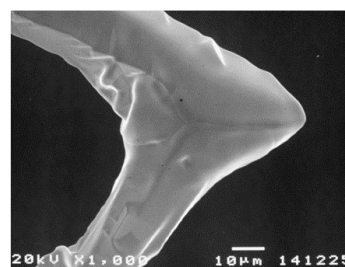


図 12 真空保持したフィラメント

5. 主な発表論文等

[学会発表](計 2 件)

- (1) 今野武志・江頭 満・小林幹彦、極細金属線を溶接して作製した SEM 用ポイントフィラメント、(社)溶接学会、平成 26 年 9 月 12 日、黒部市宇奈月国際会館「セレネ」(黒部)
- (2) 今野武志・江頭 満・小林幹彦、高電圧放電溶接法による SEM 高輝度フィラメントの作製、(社)溶接学会、平成 26 年 2 月 4 日、パシフィコ横浜会議センター(横浜)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

今野 武志 (KONNO, Takeshi)
独立行政法人 物質・材料研究機構 先端
材料プロセスユニット 主幹研究員
研究者番号: 5035417