

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：33919

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23501211

研究課題名(和文)電子顕微鏡の科学技術史 理論の発展と機器の開発

研究課題名(英文)History of Science and Technology of Electron Microscopy - Theoretical Progress and Instrumental Development -

研究代表者

黒田 光太郎 (KURODA, Kotaro)

名城大学・大学・学校づくり研究科・教授

研究者番号：30161798

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：電子顕微鏡とりわけ超高压電子顕微鏡の開発が成功したのは、日本における電子顕微鏡学理論の発展と密接に関連している。戦後の早い時期に電子顕微鏡の商用生産が始まり、輸出されたのは、戦前の1939年に設立された日本学術会議第37小委員会の活動が基礎となっている。一方、電子回折の実験および理論の展開はこの小委員会の活動とは独立して、当時の若手研究者が設立した電子回折研究会の活動が重要な役割を果たした。

研究成果の概要(英文)：Early history and development of electron microscopy in Japan has mainly been studied. Successful development of electron microscope, especially high voltage electron microscope in Japan was as strongly correlated to theoretical progress of electron diffraction and microscopy. The 37th subcommittee of the 10th committee, Japan Society for the Promotion of Science (JSPS), was established in 1939 for the synthetic research on electron microscopy, where the concerned researchers were gathered. Development of electron microscopes in Japan was started by members of this subcommittee. Such activities were responsible for Japanese company to establish commercialized machines and accomplish the first export of an electron microscope soon after the Second World War. In contrast, the developments of experimental and theoretical works of electron diffraction were independently promoted by the study group of electron diffraction or organized young researchers.

研究分野：総合領域

科研費の分科・細目：科学社会学・科学技術史

キーワード：電子顕微鏡 電子回折 回折理論 超高压電子顕微鏡 電子顕微鏡内その場観察 高分解能電子顕微鏡 観察 分析電子顕微鏡 収差補正電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

(1) 物質・材料のナノスケール領域を原子レベルで直接観察できる分析・解析装置である電子顕微鏡は、基礎科学における単なる科学分析機器にとどまらず、ナノ材料、ナノエレクトロニクス、ナノバイオなどのナノテクノロジーの各分野の発展を支えると共に、エレクトロニクスや高品質素材を中心とした産業を支える基盤としても重要性を増している。

(2) これまで日本は、電子顕微鏡の製造及び応用技術において、世界に冠たる歴史を誇ってきた。電子顕微鏡の国際市場では現在も日本製品が約6割の台数を占め、また半導体産業にとって必須の品質管理機器となっている測長走査型電子顕微鏡は、一時は国際市場を独占し輸出計測機器の最上位にあった。

一方応用面では、電子線ホログラフィーによるAB効果の検証、カーボンナノチューブの発見などの基礎科学への貢献に加え、半導体デバイス開発や構造材料の信頼性向上など、産業の発展と国民生活の向上にも多大に貢献してきた。

(3) 電子顕微鏡は、原子・分子スケールの原子像観察と回折による構造観察(原子レベル構造観察)、観察した原子・分子の分析(原子レベル元素分析)、ナノ構造と特性の関係解明(原子レベルの局所状態解析)というキャラクターゼーションを同時に行えるユニークな技術である。

電子顕微鏡は、電子線を試料に照射して観察・分析を行うもので、表面近傍を観察対象とする走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)と試料内部も観察対象とする透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)に大きく分けられる。SEMは加速電圧が数10kV程度で、試料表面から発生する2次電子または反射電子を検出し、極最表面の観察と構造分析に使用される。商用機の分解能は1nm程度である。TEMは加速電圧が概ね100kV以上で、試料を透過した電子線を拡大して検出する。加速電圧200kVの商用機の分解能は、0.2nm程度である。

TEMには電子ビームを観察範囲全体に照射する従来からのTEMと、細く絞ったビームを走査し、最後に合成して全体の透過像を得る走査型透過電子顕微鏡(STEM)がある。分析の高度化(高角環状暗視野法等)が可能であるため、近年STEMの重要性も増している。TEMの特徴は、電子線が試料内部を透過するため、試料内部の格子欠陥(転位、積層欠陥、空孔集合体など)を直接観察できることや、回折パターン解析から原子配列や結晶の方位に関する情報が得られることである。

加速電圧が概ね1000kV以上の電子顕微鏡は超高圧電子顕微鏡(High Voltage Electron Microscope: HVEM)といわれ、透過率が高いことと収差補正なしでも高分解能が得られることから、学術面を中心に大きな貢献を果

たしてきた。

(4) 電子顕微鏡の開発は、文部省の支援が主導した研究開発新分野の開拓のひとつの成功例である。この歴史を振り返ることによって、これからの科学技術の新分野開拓への多くの指針を得ることが出来ると考えられる。文科省の支援の背景を明らかにするには、基礎科学としての電子顕微鏡学の発展と電子顕微鏡の開発を関連付けて考察することが必要である。

2. 研究の目的

(1) 超高圧電子顕微鏡は、OECDがまとめた第二次世界大戦後25年間に生まれた重要な工業技術100件のなかに、日本から選ばれた新幹線技術など4件のうちのひとつである。電子顕微鏡とりわけ超高圧電子顕微鏡の開発が成功したのは、戦後日本における電子顕微鏡学理論の発展と密接に関連している。また、基礎科学の研究手段としての電子顕微鏡の普及には当時の文部省が大きな支援を行ない、産学官連携の成功例でもある。本研究では、電子顕微鏡学理論の発展と電子顕微鏡の開発を関連づけて考察するとともに、電子顕微鏡開発をそれに関わるメーカー、ユーザー、パトロンの役割を分析して、電子顕微鏡開発の科学技術史を広い視野でまとめたい。

(2) 戦後の早い時期に電子顕微鏡の生産が始まり、輸出されるまでに至るのに長い時間を要しなかったのは、戦前の1939年に設立された日本学術会議第37小委員会の活動が基礎となっている。この委員会は産官学協同で運営され、工学、医学、理学、農学という基礎から応用にわたる広い分野の研究者の協力が効果を発揮した。この委員会の記録は国立科学博物館に保存されているので、その閲覧を進める。これとともに、存命の関係者のインタビューは是非ともやっておく必要があり、電子顕微鏡開発の黎明期の歴史を記録しておきたい。

(3) また、電子顕微鏡の開発には、電子回折理論の発展も関連していると考えられる。これには菊池正士の菊池線の発見に始まる日本の物理学における研究を系統立てて検討することが必要であろう。戦後の一時期は上田良二を中心とする名古屋グループが電子回折の動力学的理論において重要な役割を果たした。この関係者からの聞き取り作業も必要であろう。このような研究活動を通して、電子回折における理論の発展と電子顕微鏡の開発との関連を明らかにしたい。

3. 研究の方法

(1) 日本学術会議第37小委員会の活動を資料の閲覧し、系統的に分析した。それと同時に、当時の係者や戦後の日本メーカーでの電子顕微鏡開発担当者などへの聞き取りを行った。当時の関係者である橋本初次郎氏(大

阪大学名誉教授) 丸勢進氏(名古屋大学名誉教授) 竹山太郎氏(北海道大学名誉教授、清水謙一氏(大阪大学名誉教授)などへのインタビューを行った。

(2) また、戦後の日本メーカーでの電子顕微鏡開発担当者への聞き取りも行った。これについてはすでに、1998年10月に日本電子元社長の風戸健二氏へのインタビューを行っている。日立製作所や日本電子などの設計開発者への問い合わせも行った。

(3) 電子回折理論の文献を系統的に分析して、その発展過程を明らかにする。それにかかわった研究者へのインタビューも行い、当時における理論と応用との関連性を追求した。また、1980年以降に確立されてきた高分解能電子顕微鏡法や電子線ホログラフィー法については、飯島澄男氏(名城大学終身教授)へインタビューを行なった。このような総合的なアプローチによって、産学官による電子顕微鏡開発の歴史と電子顕微鏡学理論の発展を関連付けた考究を行った。

(4) 1960年代には、超高圧電子顕微鏡が登場する。この実現には名古屋大学と日立製作所の共同開発が大きな役割を果たした。世界最高の加速電圧の超高圧電子顕微鏡は大阪大学に設置された。これらの超高圧電子顕微鏡は概算要求によって文部省の大型予算として実現してきた。超高圧電子顕微鏡は文部省が育てた先進技術として注目される。超高圧電子顕微鏡の開発についても、開発関係者への聞き取り作業、メーカーや大学における資料収集、文献の系統的考察によって、開発過程を調べた。また、超高圧電子顕微鏡はその後日本においては更新が続けられ、1990年代以降にも大阪大学、九州大学、名古屋大学などに新機種が導入されてきた。これらの経緯についても調査した。また、欧米で超高圧電子顕微鏡が消滅していった過程についても調査した。これらを通して、日本メーカーの超高圧電子顕微鏡が世界で最大シェアを占めるようになり、やがて独占するようになっていった開発史を考究した。

(5) 技術的に完成の域に達したと考えられていた日本の電子顕微鏡であったが、近年重大な問題が顕在化してきた。一つは高度技術者の不足と、もう一つは要素技術における外国の優位性である。特に技術面では、欧米でTEAMやSATEM、super STEMなどの国家プロジェクトが次々と継続的に展開されてきた結果、電子顕微鏡の基本である高分解能を達成するための収差補正技術を中心とした性能向上の技術開発において、欧米に遅れを取る事態となった。この収差補正技術に関して、欧米における電子顕微鏡学のパラダイム転換と電子顕微鏡開発を関連付けた考究を行った。

(6) このような総合的なアプローチによって、産学による電子顕微鏡開発の歴史と電子顕微鏡学における理論の発展を関連付けた考究を行った。

4. 研究成果

(1) 日本学術会議第37小委員会の活動に関する資料を国立科学博物館新宿分館で閲覧し、系統的に分析した。日立製作所や日本電子などの開発関係者に問い合わせを行い、電子顕微鏡開発にかかわる資料の収集を行った。

戦前の日本の電顕導入期では日本学術振興会第37小委員会の活動が重要な役割を果たした。日立製作所の試作1号機HU-1は横型の磁場型電子顕微鏡で1941年に日立製作所の研究室で稼動した。ただし、横型の電子顕微鏡は機械振動に弱いので、中央研究所の只野文哉と笠井完が中心になり、縦型のHU-2型を開発し、1942年6月に2台が完成した。このうちの1台は中央研究所に設置され、もう1台は名古屋大学に納入された。東芝も1940年に磁場型の試作機を完成し、1941年には静電型の試作機を完成させて写真撮影に成功している。島津製作所は試作機を1943年に稼動させている。

第37小委員会の委員会において応用研究は最初から重視されており、早い時期から細菌学など生物試料の観察が行われている。金属などの無機材料の観察に関しては、カーボンブラック粒子、石綿、粘土、金属酸化物粉末などについて戦前から行われている。種々の方法で表面観察が行われたが、バルク試料を薄片化した内部構造の観察は報告されていない。

(2) 一方、電子回折の実験および理論の展開は第37小委員会の活動とは独立して展開されていた。戦前戦中の日本における電子顕微鏡および電子回折装置の製作状況を確認し、菊池正士によるKikuchi linesの発見以降の電子回折の実験および理論の展開を調べる中で、当時の若手研究者が設立した電子回折研究会の活動が重要な役割を果たしたことが分かった。日本では戦前から電子回折の動力学理論の研究が熱心に研究され、その研究状況を名古屋大学の上田良二はダイナミカル・ペストと表現していた。

(3) 学振37小委員会は1947年に活動を中止したが、49年には日本電子顕微鏡学会が設立され、装置作製とともに生物および非生物の応用研究が幅広く進められるようになった。

金属をはじめとする材料研究では、試料の表面状態をうつしとったレプリカによる観察が先行したが、米国のベル研究所のHeidenreichによって1949年にアルミニウム合金の電解研磨による薄片試料作製技術が提案されてから、種々の金属合金にこの手法が適用されて、金属合金の内部構造が直接に観察されるようになった。1956年には、スイスのBollmannがステンレス鋼中の、英国のHirschらがアルミニウム中の転位をそれぞれ独立に観察している。日本では大阪大学の

西山善次らが 1963 年にステンレス鋼のマルテンサイト変態を薄片化した試料で直接観察している。

(4) 超高压電子顕微鏡 (HVEM) の開発について、関係者への聞き取り作業、メーカーや大学における資料収集、文献の系統的な考察を行って、開発過程を調べた。日本では産官学協同が超高压電子顕微鏡開発には大きな役割を果たしたことが分かった。電子顕微鏡の高加速電圧化は 1950 年代初めから進められ、50 年代中期に日本では日立製作所と島津製作所で 300kV の電顕が開発されている。1960 年にはフランスの Dupouy が 1000kV 超高压電子顕微鏡を完成させている。上田らの名大グループと只野らの日立グループは共同研究で、東レ科学振興財団の援助を得て、500kV 超高压電顕を 1965 年に完成させている。この時期に 500kV TEM を、日立は東京大学物性研究所 (鈴木平、井村徹) に納入し、島津は金属材料技術研究所 (藤田広志) に納入している。井村、鈴木は 1965 年からこの TEM を用いて、「高速変形したアルミニウムの電子顕微鏡観察」を発表している。藤田は 1967 年に「500kV 電子顕微鏡とその金属への応用」を著している。その後、井村は名大で、藤田は阪大で超高压電顕による研究を大きく展開している。

(5) 世界における HVEM の展開期も調べた。1970 年前後には、英国の AEI や米国の RCA も HVEM を開発していたが、日立製作所と日本電子が商用機を開発し、世界で高いシェアを獲得していった。

米国内会議の形式で「HVEM の最近の発達」と題した会議が 1969 年 6 月に、ピッツバーグの郊外の U.S. スチール基礎研究所で開かれ、参加者は約 200 名でそのうち海外からの参加者は 34 名で、実質的には国際会議となった。この会議を第 1 回として、HVEM の国際会議は 1986 年まで 8 回開催されることになった。

HVEM を利用した研究は、透過能が高いことから厚い試料の中の格子欠陥の観察、分解能が高いことに注目した高分解能観察、高エネルギー電子によって形成される照射欠陥の研究など多岐に渡った。とくに、画像記録にテレビカメラを導入した電顕内その場観察実験の開発とその応用研究や臨界電圧効果の発見とその応用研究は日本の研究者が主導した。

(6) HVEM によって、厚い試料の観察が可能になり、バルク材料本来の組織観察が行えるようになった。そのことと相まって、対物のレンズの上下ポールピースのギャップが大きいことを利用して、種々の電顕内試料処理装置が製作され、電子顕微鏡内その場観察実験が精力的に行われるようになった。このその場観察には、1967 年に井村徹によって導入された TV-VTR 観察記録システムが大きな威力を発揮した。

電子と物質との動力的相互作用によっ

て生じる二次反射消滅効果 (後に臨界電圧効果とよばれるようになる) が 1967 年に日本で発見された。日立では永田文男がある特定の加速電圧で等傾角干渉縞のコントラストが低下することを実験中に発見し、福原明が動力的理論で解明した。一方、名古屋では、上田良二が吸収係数の測定中にある異常現象を観察し、これをきっかけにして、動力的理論で二次反射消滅効果を予測した。ちょうどその頃、流動研究員として名大に滞在中の渡辺伝次郎は菊池線の加速電圧依存性を観察し、ある特定の加速電圧で 2 次の菊池線の強度が消滅することを実証した。この効果を利用すれば、従来測定が困難だった構造因子の精密測定ができることを上田は指摘し、渡辺はこの実験も行ない、鉄、ニッケル、アルミニウムについて極めて正確な測定値を得ている。

(7) 電界放出型電子銃を搭載した STEM は 1968 年に A.V. Crewe らによって完成している。Crewe らは 1970 年に STEM による単原子像の観察を行っている。その後 1000kV の超高压 STEM の完成を目指したが、残念ながら中断に終わっている。

STEM 専用機は 1974 年にイギリスの Vacuum Generators によって HB5 が商用機として製造されている。日本のメーカーは TEM に STEM 機能を装備するハイブリッド型を作り続けて、STEM 専用機が登場するのは 1999 年になってであった。STEM 専用機への関心のなさは、その後の収差補正電子顕微鏡の開発に日本のメーカーが乗り遅れる原因のひとつであったといえよう。STEM においてもコンピュータによる制御ソフトウェアが重要な役割をするのに対して、その開発に熱心でなかった日本のメーカーはソフト開発を軽視する体質に陥っていたのではないかと。

STEM における観察方法で特長的な Z-contrast の利用に関しては 1979 年に最初の論文が出ている。それが高角度環状暗視野法 (HAADF) として S. J. Pennycook と共同研究者によって完成するのは 1990 年頃である。Z-contrast 像によって、原子の種類まで区別できるようになり、HREM 観察の可能性を大きく広げた。2000 年前後から欧米で、そして少し遅れて日本でも収差補正電子顕微鏡のプロジェクトが展開された。その中で原子レベルでの分析機能を発揮しやすい STEM が重視されるようになった。

HAADF は原子番号に比例したコントラストを呈するので、重い原子の可視化に有効である。軽い元素の可視化には最近明視野法が適用されるようになって、東大の幾原雄一は水素の可視化に成功し、阿部英司はボロンを観察している。

(8) 透過電子顕微鏡法の発達史を概観した総合報告を『材料の科学と工業』に寄稿した。そこでは、電子顕微鏡の発見、日本における電子顕微鏡の開発、格子欠陥を含む薄膜結晶

の電子顕微鏡観察、高分解能電子顕微鏡観察、超高压電子顕微鏡、電子顕微鏡内その場観察実験、分析電子顕微鏡法、走査透過電子顕微鏡について、それらの始まりからどのように展開していったかを振り返り、今後の電子顕微鏡法のあり方を探った。

国内では、研究期間を通して、日本顕微鏡学会、日本金属学会、日本科学史学会、化学史学会の講演大会で研究成果を発表してきた。また、2013年7月に英国のマンチェスターで開催された「第24回科学史、技術史、医学史世界会議」に参加して、「日本における電子顕微鏡の黎明期とその発展」という講演発表を行った。

国連が2014年を世界結晶年と制定していることを記念した雑誌『金属』の特集に依頼論文として、「日本における電子顕微鏡学の黎明期 - 電子回折と電子顕微鏡」を寄稿した。

日本における電子顕微鏡の開発史に関しては、吉岡斉編『[新通史]日本の科学技術 第2巻』の3-14章として、「電子顕微鏡」を執筆した。

本研究の成果を日本顕微鏡学会でも2年に渡って講演発表してきたことから、学会ホームページに電子顕微鏡学の歴史に関する連載記事の掲載を依頼され、2014年夏から開始する予定である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計4件)

黒田光太郎、日本における電子顕微鏡学の黎明期 - 電子回折と電子顕微鏡 -、金属、査読無、84巻、2014、310-316

黒田光太郎、電子顕微鏡法の化学物質研究への展開、化学史研究、査読無、40巻、2013、109

黒田光太郎、日本における電子顕微鏡の無機物質研究への導入期、化学史研究、査読無、39巻、2012、115

黒田光太郎、電子顕微鏡法の発達史、材料の科学と工業、査読有、48巻、2011、211-216

[学会発表](計14件)

黒田光太郎、電子顕微鏡その場観察による化学反応の研究事始め、2014年度化学史研究発表会(年会)、2014年7月5日、広島工業大学広島校舎

黒田光太郎、世界結晶年に寄せて - 黎明期における電子回折と電子顕微鏡の「相反」 -、日本科学史学会第61回年会、2014年5月24日、酪農学園大学

黒田光太郎、日本電子顕微鏡学会設立以前の電子回折と電子顕微鏡の研究開発、日本顕微鏡学会第70回記念学術講演会、2014年5月13日、幕張メッセ国際会議場

黒田光太郎、金属研究への超高压電子顕微鏡の展開期 その2、日本金属学会2014年春期(第154回)講演大会、2014年3月22

日、東京工業大学大岡山キャンパス
黒田光太郎、金属研究への超高压電子顕微鏡の展開期、日本金属学会2013年秋期(第153回)講演大会、2013年9月17日

Kotaro Kuroda, The early history and development of the electron microscope in Japan, 24th International Congress of History of Science, Technology and Medicine, July 24, 2013, The University of Manchester

黒田光太郎、電子顕微鏡法の化学物質研究への展開、2013年度化学史研究発表会(年会)、2013年7月7日、東京電機大学東京千住キャンパス

黒田光太郎、日本における電子顕微鏡法の揺籃期、日本科学史学会第60回年会、2013年5月26日、日本大学商学部

黒田光太郎、日本における電子顕微鏡法の材料研究への導入期、日本顕微鏡学会第69回学術講演会、2013年5月20日、ホテル阪急エキスポパーク

黒田光太郎、金属研究における超高压電子顕微鏡の導入期、2013年3月29日、東京理科大学神楽坂キャンパス

黒田光太郎、金属研究における電子顕微鏡の導入後期、日本金属学会2012年度秋期大会、2012年9月18日、愛媛大学

黒田光太郎、日本における電子顕微鏡の無機物質研究への導入期、2012年度化学史研究発表会(年会)、2012年7月14日、ホテルサンルート徳山

黒田光太郎、日本における電子顕微鏡の黎明期、日本科学史学会第59回年会・総会、2012年5月26日、三重大学生物資源学部校舎

黒田光太郎、金属研究への電子顕微鏡の導入期、日本金属学会2012年春期大会、2012年3月38日、横浜国立大学

[図書](計1件)

黒田光太郎、原書房、[新通史]日本の科学技術 第2巻(吉岡斉編集代表)、3-14 電子顕微鏡、2011、250-264、

6. 研究組織

(1)研究代表者

黒田 光太郎 (KURODA, Kotaro)
名城大学・大学・学校づくり研究科・教授
研究者番号: 30161798