最優秀賞

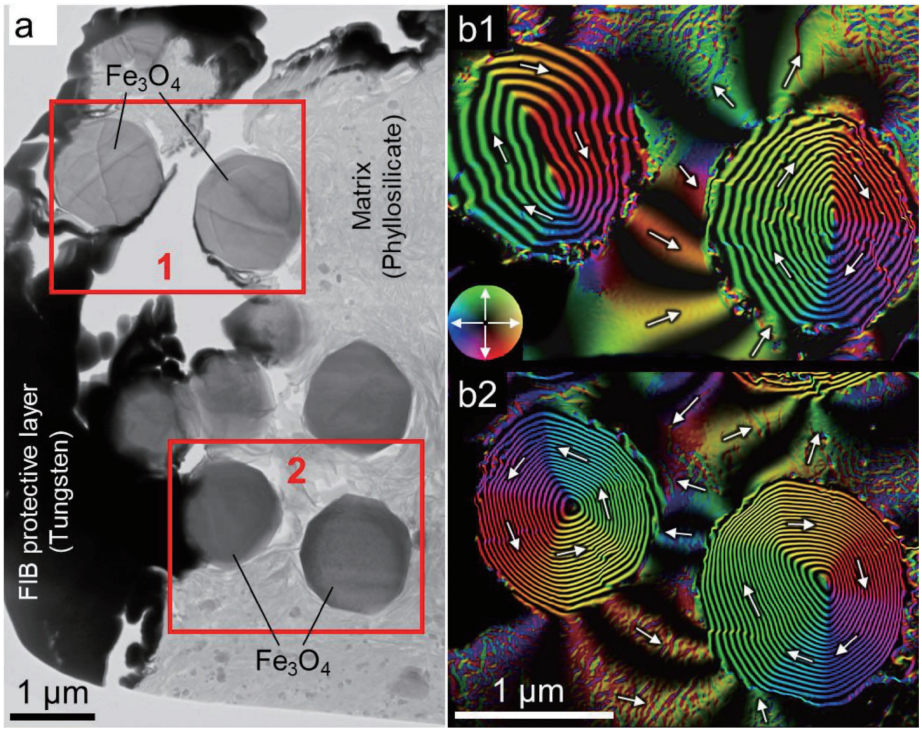
はやぶさ2探査機が持ち帰った小惑星リュウグウに含まれる磁鉄鉱粒子の磁場分布解析

①「太陽系はどのようにして形成されたのか」．この根源的な問いの答えに辿り着く重要な手がかりが小惑星や彗星等の小天体に存在する．これまで人類は，始原的な小天体に由来すると考えられる隕石を分析することで太陽系初期の環境に関する情報を得てきた．しかし，隕石の起源天体の特定はほとんど不可能であり，地球環境の影響を長期間受けているため，隕石と起源天体の形成場所・軌道進化を関連付けた議論は限定的であった．一方，はやぶさ2探査機が持ち帰った小惑星リュウグウの試料はその由来が明快であり，人類が手にした最も新鮮な始原的試料であるため，その特性を知ることが太陽系の形成史や生命の起源を読み解くカギとなる．我々はリュウグウ試料に含まれる鉱物のうち生成環境の情報を磁場の形で保持している磁鉄鉱粒子に着目し，その磁場分布を電子線ホログラフィーにより直接観察した．試料の変質・劣化を避けるため，試料の受け取りからホログラフィー観察まで50 μT以下の弱磁場環境で保持し，大気暴露はバルク試料搬送時の短い時間（15 s以下）に抑えた．リュウグウ試料の一部をクライオ集束イオンビーム法により薄片化した試料の透過電子顕微鏡像を図aに示す．粒径1 μm程度の粒子はホログラフィー観察後の電子回折解析とエネルギー分散型X線分析により磁鉄鉱（Fe_3O_4）と同定された．図b1, 2はそれぞれ図a中の矩形領域1, 2のホログラフィー観察により得られた磁力線・磁場分布（カラーホイールマップは磁場の方向と強さを表す）を示している．図b1, 2より，磁鉄鉱粒子の内部に渦状磁区が形成されていることがわかる．これは地球上の天然の磁鉄鉱では観察例がない磁区構造である．また，図b1, 2で観測された粒子外部の漏れ磁場は，小惑星の残留磁化の主要な担い手を世界で初めて可視化した成果である．リュウグウの残留磁化は太陽系形成期の環境を反映しているため，例えば今回の結果に基づく物質移動シミュレーションにより太陽系形成に要した時間を紐解くことができると期待される．

②日立ハイテク社製ホログラフィー透過電子顕微鏡 HF-3300EH・300 kV

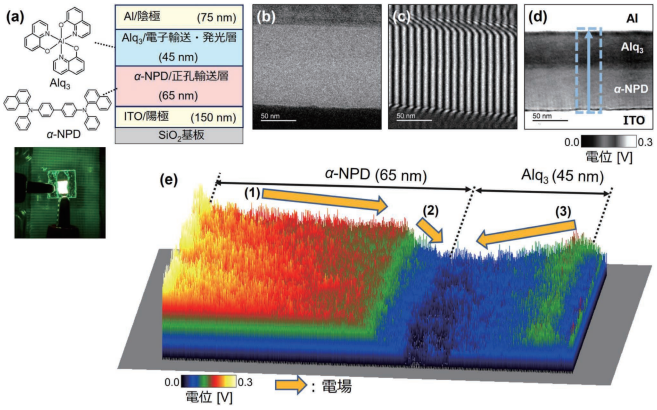
③（JFCC）穴田智史・加藤丈晴・吉田竜視・山本和生（北海道大学）木村勇気（日立製作所）谷垣俊明（東北大学）中村智樹（東京大学）橘省吾

④（JFCC）穴田智史



凡例：①説明，②装置・撮影条件，③出品者所属氏名，④撮影者所属氏名

優秀賞
高感度位相シフト電子線ホログラフィーによる有機 EL 素子内部の電位分布直接観察



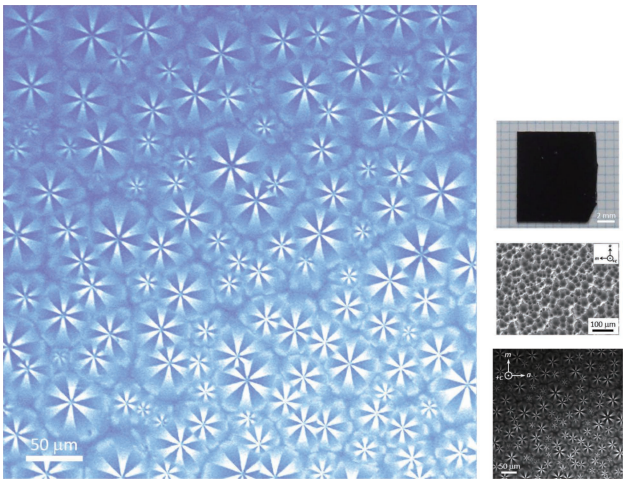
①有機 EL 素子の発光は，電圧印加によって電極から有機層に注入された電子と正孔が再結合することで生じる．一方，寿命向上に必須な情報である素子の劣化メカニズムは，未だ完全に理解されていない．これまでのマクロスケールの計測では，特定の界面や有機層からの情報を選択的に取得していたため，素子全体の電荷挙動や不純物拡散といった多様な劣化要因の特定が困難であった．これらの要因が引き起こす素子の複雑な劣化メカニズムを明らかにするためには，素子全体の電位分布をナノスケールで計測することが重要である．本研究では，世界最高の電位検出感度（従来比 6 倍）を誇る位相シフト電子線ホログラフィーを用いて，有機 EL 素子内部の電位分布を直接的に可視化し，その形成要因を明らかにすることに成功した．

本研究で作製した有機 EL 素子の構造と有機半導体の構造式を図(a)に示す．電子輸送・発光層（Alq_3）と正孔輸送層（α-NPD）からなるシンプルな 2 層型有機 EL 素子を作製し，電圧印加による発光を確認した（図(a)下）．断面 TEM 試料の作製には集束イオンビームを用い，試料厚さ 360 nm に薄片化した．図(b)の TEM 像では，有機材料間でほとんどコントラスト差が見られず，通常の TEM 法では有機 EL 素子の評価が困難であることが分かる．同じ視野で撮影したホログラムを図(c)に示す．また，ホログラムから位相シフト再生法により再生した電位分布像を図(d)に示す．本手法によって，有機材料間の電位差を明瞭に捉えることに成功した．図(d)中の破線四角枠領域における電位分布の鳥観図を図(e)に示す．驚くべきことに，2 層のみからなる有機 EL 素子内部で，電場の異なる 3 つの領域が形成されていることが明らかになった．図(e)中に示す電場(1)はα-NPD 層内での正孔の蓄積，電場(2)はα-NPD/Alq_3 界面での電子の拡散，電場(3)は Alq_3 の配向分極によって形成されていると考えられる．今後は，オペランド計測による劣化過程の直接観察を通して詳細な劣化メカニズムを解明し，更なる寿命向上につなげることが期待できる．

②日立ハイテク製ホログラフィー TEM（HF3300-EH）・300 kV，ダブルバイプリズム位相シフト電子線ホログラフィー

③（岩手大学）佐々木祐聖・吉本則之（JFCC）山本和生・穴田智史・平山司
④（岩手大学）佐々木祐聖

特別賞
3D-OVPE-GaN 単結晶におけるフローラル成長モード



①窒化ガリウム（GaN）は次世代の高効率パワーデバイスへの応用が期待されている．その実現のためには，高品質の GaN バルク単結晶基板を低コストで製造する技術を確立することが必須である．近年，GaN 単結晶の新たな成長手法として，酸化物気相成長（OVPE）法が開発されている．この方法では，現在主流のハイドライド気相成長（HVPE）法の問題である固体の副生成物が生じず，長時間の連続成長により mm オーダーの厚さのバルク単結晶を作製することが可能となる．この OVPE 法において，原料の V/III 比を調整することにより，転位を起点とした逆ピラミッド状の成長ピットを形成する三次元（3D）成長モードを得られることが見出されている．この写真は，3D-OVPE-GaN 単結晶の *c* 面を化学機械研磨して得られた表面を SEM カソードルミネッセンス（CL）マッピングにより観察したものである．本像において，6 回対称性を有する特徴的な花弁状（フローラル）コントラストが観察されている．これは，成長ピットを構成する 12 枚のファセット面に対応しており，*m* 軸方向の {30-34} 面ファセットで CL 強度が高く，*a* 軸方向の {11-22} 面ファセットで強度が低くなっている．CL 強度の変化は，各ファセット面における成長時の酸素不純物取り込み量の違い（{30-34} ファセットで酸素濃度が高い）と局所的な成長条件のゆらぎを反映していると考えられる．この成長法において，膜厚の増加とともにピット（転位）の数が著しく減少し，従来法より 2 桁程度低い転位密度を有する高品質の結晶が得られることが示された．さらに本結晶は，高い酸素不純物濃度に起因する高電気伝導率を示す．転位低減機構の詳細は現在解析中であるが，低転位密度かつ高電気伝導度のバルク単結晶を高効率で作製可能な本成長法は，次世代 GaN パワーデバイス開発における新機軸になると期待される．

②日本電子社製 走査型電子顕微鏡 JSM-7610F・堀場製作所社製 カソードルミネッセンス装置

③（大阪大学）栗谷淳・藤平哲也・林侑介・宇佐美茂佳・今西正幸・森勇介・酒井朗（パナソニック株式会社）滝野淳一・隅智亮・岡山芳央
④（大阪大学）栗谷淳・藤平哲也（パナソニック株式会社）滝野淳一

凡例：①説明，②装置・撮影条件，③出品者所属氏名，④撮影者所属氏名

日本セラミックス協会　第 47 回学術写真賞　選評

今回は TEM/STEM 部門 4 件，SEM 部門 2 件，その他部門 2 件と，全体で 8 件の応募があった．厳正なる審査および議論の結果，最優秀賞 1 点，優秀賞 1 点，特別賞 1 点が選出された．TEM/STEM 部門から 2 件，SEM 部門 1 件の受賞となった．

各賞の選考は，「学術的観点（新規性，応用性）」および「技術的観点（撮影・試料作製技術，写真の質）」を選考基準として行われた．今回の応募作品は，観察対象が酸化物，有機素子，窒化物，ガラスや小惑星など多種多様であった．この多様な材料への解析アプローチとして，電子線ホログラフィー法，透過電子顕微鏡法，SEM カソードルミネッセンス法，光コヒーレントトモグラフィー法など，各種の顕微鏡観察手法が用いられていた．これは，観察対象となる材料に合わせて各顕微鏡技術の特徴を選択し利用することで，材料の機能や特性，起源をより精緻に解明しようとする最近の傾向を反映したものと考えられる．今後の各分野での顕微鏡技術の応用・発展が期待できる作品が揃ったといえる．今回受賞した作品は，像の美しさや構図の美しさだけではなく，学術的価値についても高い評価を受けた．今回惜しくも選外となった作品においても芸術面および学術面で高く評価されるものもあった．

最優秀賞の受賞者については，セラミックス誌 Grain Boundary において撮影の苦労話が掲載される予定であり，受賞者がどのような思いでどのような努力を重ねて作品を作り上げたかが語られる．今後の応募の際の参考として是非ご一読をおすすめしたい．

以下では受賞作品について紹介する．

1. 最優秀賞「はやぶさ 2 探査機が持ち帰った小惑星リュウグウに含まれる磁鉄鉱粒子の磁場分布解析」

電子線ホログラフィー法を用いて小惑星リュウグウに含まれている太陽系形成期の原始的な磁鉄鉱（Fe_3O_4）の磁場分布を観察した作品である．

はやぶさ 2 探査機により小惑星リュウグウから持ち帰った試料は人類が手にした最も新鮮な始原的なものである．応募者らは，この試料を地上での変質を避けるため，試料の搬送，クライオ集束イオンビーム法による薄片化工程，電子顕微鏡観察まで弱磁場環境（50 μT 以下）で保持し，大気暴露は十数秒以下の短時間に留めることで，太陽系初期の原始的な状態を保持したまま観察を行っている．そして，試料中の磁鉄鉱において，地球上の天然の磁鉄鉱では観察例がない磁区構造を形成していることを電子線ホログラフィー法により見いだしている．このリュウグウの残留磁化は太陽系形成期の環境を紐解くカギとなることが期待される．学術的な価値は高く，さらに試料調整および観察手法など技術面においても高く評価され最優秀賞に選出された．

（TEM/STEM 部門）

2. 優秀賞「高感度位相シフト電子線ホログラフィーによる有機 EL 素子内部の電位分布直接観察」

有機 EL 素子内部における電位分布の変化を電子線ホログラフィーにより観察し，通常の透過電子顕微鏡像では観察できない有機材料間に生じる電位差を可視化した作品である．

通常の透過電子顕微鏡像では，有機材料間ではほとんどコントラスト差が見られず，素子の評価が困難であった．応募者らは電子輸送・発光層（Alq_3）と正孔輸送層（α-NPD）からなる 2 層型有機 EL 素子を集束イオンビームを用いて薄片化し，高感度な位相シフト電子線ホログラフィー法により有機 EL 素子内部の電位分布の可視化に成功した．そして，2 層のみからなる素子内部には有機材料界面での電子拡散と考えられる領域を含む，電場の異なる 3 つの領域が形成されていることを明らかにしている．撮影試料作製技術だけではなく，この手法を活用した劣化挙動解明への展開など学術的な応用性も高い評価を受けた．

（TEM/STEM 部門）

3. 特別賞「3D-OVPE-GaN 単結晶におけるフローラル成長モード」

酸化物気相成長（OVPE）法を用いて成長させた窒化ガリウム（GaN）単結晶の転位を起点とした成長ピットを SEM カソードルミネッセンス（CL）法により観察した作品である．

次世代パワーデバイスへの応用が期待される GaN の単結晶成長手法として OVPE 法がある．応募者らは，この OVPE 法により原料比を調整し成長させた GaN 単結晶の表面を SEM CL 法により観察し，6 回対称性を有する特徴的な花弁状（フローラル）コントラストが形成することを明らかにした．転位を起点とした成長ピットを構成する 2 種類のファセット面において酸素濃度が異なる．このとき，各面の酸素濃度の違いに応じて CL 強度が変化しフローラルコントラストが生じる．この OVPE 法で成長させた GaN 単結晶の成長ピットを構成するファセット面の酸素濃度変化から生まれるフローラルコントラストの美しさから芸術的価値が高い作品として評価を得て特別賞となった．

（SEM 部門）

学術写真賞は時代と共に移り変わっていく観察技術・手法・装置・材料のトレンドを次の世代に目で見える形で残していく役割も担っている．今後もさまざまな観察手法や材料を扱った作品の応募を期待している．

（学術写真賞　選考委員会）