

平成31年度科学技術試験研究委託費  
先端研究基盤共用促進事業  
(共用プラットフォーム形成支援プログラム)

アトミックスケール電磁場解析  
プラットフォーム  
委託業務成果報告書

令和2年5月  
株式会社日立製作所

本報告書は、文部科学省の科学技術試験  
研究委託事業による委託業務として、株  
式会社日立製作所が実施した平成31年  
度アトミックスケール電磁場解析プラッ  
トフォームの成果をとりまとめたもので  
す。

## 目次

### I. 委託業務の目的

- 1. 1 委託業務の題目・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1
- 1. 2 委託業務の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1

### II. 平成31年度の実施内容

- 2. 1 実施計画・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1
- 2. 2 実施内容（代表機関）・・・・・・・・・・・・・・・・・・10
  - ①プラットフォーム運営体制の構築・・・・・・・・・・10
  - ②利用支援体制の構築・・・・・・・・・・・・・・・・・・11
  - ③ワンストップサービスの設置・・・・・・・・・・・・・13
  - ④共用機器・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・14
  - ⑤人材育成・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・14
  - ⑥ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の  
高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等・・・・15
  - ⑦コミュニティ形成、国際的ネットワーク構築・・・・・・・・15
  - ⑧その他・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・16
    - 1）装置利用結果の件数と概要・・・・・・・・・・・・・16
    - 2）外部発表に関して・・・・・・・・・・・・・・・・・・20
    - 3）その他・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・21
    - 4）装置利用結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・21
- 2. 3 実施内容（実施機関）・・・・・・・・・・・・・・・・・・75
  - ①利用支援体制の構築・・・・・・・・・・・・・・・・・・75
  - ②共用機器・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・76
  - ③人材育成・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・77
  - ④ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の  
高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等・・・・79
  - ⑤その他・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・80
- 2. 4 協力機関の取組状況・・・・・・・・・・・・・・・・・・82

### III. フォローアップ調査項目

- 3. 1 分野融合・新興領域の拡大について・・・・・・・・・・83
- 3. 2 スタートアップ支援について・・・・・・・・・・・・・・・・83
- 3. 3 共同研究・受託研究について・・・・・・・・・・・・・・・・84
- 3. 4 試作機の導入・利用による技術の高度化について・・・・84
- 3. 5 ノウハウ・データ共有について・・・・・・・・・・・・・・・・84
- 3. 6 技術専門職のスキル向上・キャリア形成について・・・・84
- 3. 7 利用アンケートについて・・・・・・・・・・・・・・・・・・84

## I. 委託業務の目的

### 1. 1 委託業務の題目

「アトミックスケール電磁場解析プラットフォーム」

### 1. 2 委託業務の目的

本事業は、産学官が共用可能な研究施設・設備等について、その整備運用を含めた施設間のネットワーク構築により、高度な計測分析機器を中心としたイノベーション創出のためのプラットフォームを形成するとともに、日本の研究開発基盤の持続的な維持・発展に貢献することを目的とする。

本プラットフォームでは、原子分解能・超高圧ホログラフィー電子顕微鏡をはじめとする原子レベルの分解能を有する電磁場計測装置及びその技術を、国内外の第一線の材料研究および量子物理分野等の課題解決に広く活用できるよう共用プラットフォーム化し、イノベーションの創出を目指す。

このため、株式会社日立製作所、一般財団法人ファインセラミックスセンター、国立大学法人九州大学及び国立大学法人東北大学は共同で業務を行う。

株式会社日立製作所は、代表機関として、プラットフォーム全体の運営に係る業務を行う。

## II. 平成31年度の実施内容

### 2. 1 実施計画

原子分解能・超高圧ホログラフィー電子顕微鏡を有する株式会社日立製作所の研究開発グループ（以下「日立製作所」という）を代表機関として、ホログラフィー電子顕微鏡装置とその技術を保有する国内の3研究機関で構築した運営体制を維持継続して、さらなる普及と装置共用を推進していく。なお、平成30年度との違いを明記した事項や平成31（2019）年度に限ったイベントの記載事項を除いて、平成31（2019）年度は平成30年度までの業務内容と体制を継続して委託業務を遂行する。

#### （i）委託機関（代表機関）としての業務

【機関名：株式会社日立製作所】

##### ① プラットフォーム運営体制の構築

1) プラットフォーム実施機関、協力機関、事業支援機関と連携するための取組

電子線ホログラフィーでそれぞれ特徴のある国内3機関を実施機関とし、

プラットフォームのリエゾン業務とコーディネーター業務は代表機関においてコーディネーターとそれを補助する実施担当、および業務主任者が実施する。また、それぞれの機関のサポート部門は、運営、広報、財務等の業務をサポートする。運営委員会は、コーディネーター、各機関の業務主任者、担当責任者および実施担当で構成され、プラットフォームの運営指針を決定する。また、外部有識者をアドバイザーとし、採択課題の選定や結果の妥当性、実験方法への助言などを得る。さらに、二つの研究機関を協力機関とし、電子線ホログラフィーや超高圧電子顕微鏡に関する技術面や装置利用課題の選定方法のような運営面に関するアドバイスを必要に応じて受ける体制とする。

## 2) 他のプラットフォームと連携するための取組

代表機関は、申し込みがあった利用課題に他のプラットフォームで取り組むことがふさわしい内容があった場合は、他のプラットフォームに紹介する。また、プラットフォーム間の連携と情報交換を目的とした連絡会議に参加する。

## ② 利用支援体制の構築

代表機関である本機関は、業務主任者と、担当責任者、実施担当からなる支援体制を整備している。本事業では業務担当職員（コーディネーター）1名を雇用する。

また、装置利用支援のために電子顕微鏡技術者を各実施機関に数名ずつ配置する。具体的には、次項の“実施機関としての業務”にそれぞれの実施機関ごとに記載する。また、必要に応じて研究所内の磁性、電子顕微鏡以外の計測、シミュレーションのエキスパートのアドバイスを得ることができる環境とする。

担当責任者及び実施担当は電子顕微鏡技術サポート、財務、渉外、事務などの業務を担当する。また、実施担当は装置利用者の承諾が得られれば電子顕微鏡以外の計測技術やシミュレーションのエキスパートのアドバイスを得ることも可能な環境とする。

具体的な支援環境は以下の通りとする。

1. 装置利用ユーザーである外来者の通信環境を確保できる個室スペース等の確保。
2. 取得した大容量画像データをインターネット環境からリモートアクセスできるシステムを、日立製作所の原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡と国立大学法人九州大学（以下「九州大学」という）の加速電圧300kVホログラフィー電子顕微鏡に装備。

代表機関はプラットフォームのインターネット窓口を開設し、ユーザーからの申し込みを常時受け付ける。申し込みへの対応の可否及び対応する場合にはどの実施機関の装置を使用するかについて、代表機関が主催する運営委員会にて審議する。運営委員会は、課題の申し込みがあった時点で可能な限り迅速に開催し、取組方の案を策定する。その案をアドバイザーに確認し、承認を受けたうえで決定し、ユーザーに連絡する。また、運営委員会ではそれぞれの実施機関における課題の進捗状況共有も行う。

ユーザーの要求する計測仕様にもとづいて共用装置の性能や特徴、利用者の利便性を総合的に判断して使用する共用装置を決定する。使用する共用装置が決まった段階で原則としてその装置を保有する実施機関がユーザーの対応をすべて行う。

代表機関は、課題の募集や利用希望者からの問い合わせの窓口となり、必要に応じて協力機関に技術的または運営上のアドバイスを求める。

これまでの本事業での実績と、実施機関で研究参画中のCREST・さがけ複合領域「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」の研究成果を適用することなどにより効率化を図りつつ、平成31（2019）年度は平成30年度と同じ、4機関あわせて20件程度を目標とする。

また、装置利用時間だけでなく、データ解析や事前準備に技術スタッフが従事する時間も考慮して装置使用料を算出する。ただし、利用者の予算も限られているため大学と民間企業で差を設けるなどを検討する。

### ③ ワンストップサービスの設置

プラットフォーム専用ホームページの維持管理と装置利用の申し込み・問い合わせ窓口、研究実施に関する覚書締結などは代表機関で一本化することで、利用者からのワンストップサービスとしての利便性を図る。

### ④ 共用機器

原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡（1.2MV）と超高圧ホログラフィー電子顕微鏡（1MV）の2台の超高圧ホログラフィー電子顕微鏡、及びホログラフィー電子顕微鏡（350kV）を共用機器とする。

### ⑤ 人材育成

若手研究者向けのセミナーの開催や、ユーザーが一定期間滞在して装置

を使用できる環境を準備して、世界最先端の研究を担う若手研究者の育成に貢献する。代表機関としてはその企画のとりまとめを行い実施内容はホームページに掲載する。具体的な取組に関しては各実施機関の特性に合わせた取組となるので次項の“実施機関としての業務”に記載する。

なお、代表機関では平成31（2019）年4月より増員し、今後の電子線ホログラフィー技術を担う人材を育成する。

⑥ ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等

平成31（2019）年度末には装置共用で得られた公開可能な成果をホームページに掲載し、それらをまとめた冊子を発行する。

装置利用テーマにおいて新たな機器開発の具体的課題を見出せた場合は、装置メーカーや試料ホルダ専門メーカーなどと連携して開発提案をできるようにメーカーとは密接な関係を維持していく。大規模な機器の更新による装置機能向上は、装置開発に関する競争的資金や代表機関が実施機関の独自開発予算を確保することで実施していく。

⑦ コミュニティ形成、国際的ネットワーク構築

毎年の電子顕微鏡学会または応用先の材料に関する主要な学会において成果発表を行っていく。平成31（2019）年度もユーザー層の拡大のため日本顕微鏡学会、日本磁気学会など関連する学会での広報活動を実施する。また、平成31（2019）年6月に一般財団法人ファインセラミックスセンター（以下「ファインセラミックスセンター」という）が主催する最先端の顕微鏡と理論計算に関する国際シンポジウム等を通じてコミュニティを拡大することで、新しいアイデアに基づいた装置利用を探索していく。

（ii）再委託機関（実施機関）としての業務

【機関名：一般財団法人ファインセラミックスセンター】

① 利用支援体制の構築

本機関では、業務主任者、兼、担当責任者と、実施担当からなる支援体制を整備している。なお、実施担当は平成30年度から本機関で3名雇用（それぞれの本事業での人件費の支出率は、業務担当職員1名は30パーセント、もう1名は65パーセント、補助者1名は100パーセント）を継続し、平成31（2019）年度も本機関が担当すると決定された課題について、業務主任者と電子線ホログラフィーを専門とする実施担当で解析手法を検討し、手分けして実験と解析を担当する。また、必要に応じて所内

外の協力者にも助言を得ながら結果の解釈と考察を行う。なお、利用者側との技術打ち合わせは、実施機関のメンバーが利用者側に出向いて行うこともある。従来ファインセラミックスセンターが技術相談や共同研究を受けてきた企業・大学との連携関係を生かして本事業としての電磁場解析を発展させるとともに、新規利用者の開拓を図る。

また、単なる装置利用時間だけでなく、データ解析や事前準備に技術スタッフが従事する時間も考慮して装置使用料を算出する。ただし、利用者の予算も限られているため大学と民間企業で差を設けるなどを検討する。

## ② 共用機器

加速電圧 300 kV ホログラフィー電子顕微鏡

## ③ 人材育成

電子線ホログラフィー技術を活用できる企業人を育成することを目的の一つとして、以前から①出向社員の受け入れ、②オープンラボ制度（企業の分析・解析業務のためにファインセラミックスセンターの電子顕微鏡を活用していただく制度）による企業の電子線ホログラフィー活用の支援を行っている。現在、この目的のために企業から出向社員を受け入れ、オープンラボ制度利用者を支援して、実験現場での技術指導を行っている。平成31（2019）年度もこの状況を継続する。講演会や講習会などの座学だけではできない実践的技術指導を行い、企業で電子線ホログラフィーを活用できる人材の確実な育成と企業内での電子線ホログラフィー活用に貢献する。

本事業を担当する博士研究員は、これまで本プラットフォームの仕事に従事して電子線ホログラフィーの基本的理解、高度な技術を習得しており、今後は、既存の技術を使えるだけでなく、さらに精度や信頼性の高いデータを取得するための新しい計測手法の開発にも取り組む。

## ④ ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等

担当した電磁場解析における経験を蓄積し最適な解析条件の標準化を図り、解析業務の効率化と迅速化に役立てる。また、技術の普及と利用者の拡大に活用する。

## ⑤ その他

ファインセラミックスセンターでは平成20年を第1回として、以降2



年に一度、最先端の顕微鏡と理論計算に関する国際シンポジウム（International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations：AMTC）を主催してきた。このシンポジウムでは、電子線ホログラフィーをはじめ収差補正電子顕微鏡や環境顕微鏡などの最先端顕微鏡技術と理論計算を扱う世界トップクラスの国内外研究者を招き、最新の研究成果の披露と活発な議論の場を提供している。次回の第6回AMTCは、平成31（2019）年6月に開催することが決定している。日本顕微鏡学会学術講演会と日程を連結させることにより相乗効果による両会議の活性化が期待できる。

【機関名：国立大学法人九州大学】

① 利用支援体制の構築

本機関では、業務主任者兼担当責任者と、2名の実施担当（それぞれ技術系、事務系の業務を担当）からなる支援体制を整備している。なお、技術系の実施担当は本事業で雇用する学術研究員（平成29年度から雇用を継続）であり、平成31（2019）年度も引き続き高度な技術支援業務を担当する。

本機関で実施される課題については、業務主任者、技術系の実施担当、課題申請者の三者による協議を経て、綿密な実験計画を立案する。業務主任者は課題進捗状況の掌握、データ解析や取り纏めの主導、装置の維持管理に関わる業務（修理が必要な事案への対処など）を行う。実施担当は、要請に応じて試料調製や予備的な電子顕微鏡観察を行うとともに、電子線ホログラフィーに関わるデータ収集とその解析、並びにホログラフィー電子顕微鏡のメンテナンス業務を担当する。物品購入契約等に関しては、事務系の実施担当が業務支援にあたる。

② 共用機器

加速電圧300kVホログラフィー電子顕微鏡

③ 人材育成

本事業で雇用する技術系の実施担当（若手人材）は、平成29年度と平成30年度における事業の実施を通して、電子線ホログラフィーに関わる実験・解析技術のほか、電子顕微鏡の維持管理に関わる高度な技術を習得した。平成31（2019）年度は実施担当に対して以下の点に関わる指導機会を設けて（月2回程度の頻度を想定）、将来的に電子線ホログラフィー関連の事業を担い得る人材の育成を図る。指導に関わる項目は（1）研究

計画の立案、（２）進捗状況や難易度を踏まえた計画の調整・最適化、（３）実験データの解釈、（４）成果発表等の４点を計画する。

課題申請者とその研究グループに対しては、必要に応じて、業務主任者が電子線ホログラフィーの基礎や技術の紹介をセミナー形式、または研究討論の形で行い、特に本事業に参加する若手研究者、若手技術者、学生等のスキルアップを支援する。

この他にも、本機関で年１０回程度開催される学内利用者向けの技術研修会（利用者の多くが大学院生や若手の研究員等）、電子線ホログラフィーに関係した講義や情報提供と、アトミックスケール電磁場解析という先駆的な研究概念の啓蒙活動を行う。

#### ④ ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等

平成３０年度より、ファインセラミックスセンターによる支援のもと、本機関でも「縞走査法」による電子線ホログラムの位相再生に取り組んでいる。この手法は、例えば単結晶基板上に成膜された物質の界面電位解析等において極めて有効である。平成３１（２０１９）年度の事業でも、縞走査法の利用が期待される課題（継続課題）が見込まれ、本機関においても解析技術の高度化に取り組む。

平成３１（２０１９）年度は、日立製作所と共同で実施している電子線ホログラムの自動取り込み技術の完成を目指す。日立製作所の超高压電子顕微鏡と相補的に利用することで解析に用いるデータ総数を大幅に増加できる技術であり、本プラットフォーム事業を介した技術紹介や利用機会の提供を試みる。

なお本機関では、平成３１（２０１９）年度の第三四半期を目処に、電子直接検出型のカメラをホログラフィー電子顕微鏡に設置する計画がある。従来のＣＣＤカメラと比べて、電子に対する感度や、画像取り込みの時間の条件設定において優越性があり、同じく電子線照射に弱い試料のデータ収集等で活用が期待され、本事業でも有効に利用する。

#### ⑤ その他

本機関・超顕微解析研究センターが実施機関となるナノテクノロジープラットフォーム事業との有機的な連携を図る。電子線ホログラフィー（物質材料の電磁場解析）を基軸とする本事業と、分析電子顕微鏡や試料作製装置の利用機会を提供するナノテクノロジープラットフォーム事業を関与させることで、試料作製、結晶の微細構造解析、電磁場解析を九州大学で

一括して行う環境を整備・提供する。電子線ホログラフィーの新規課題を設定する上でも、先端的・汎用的な分析電子顕微鏡技術との連動は有効な場合があり、必要に応じて本機関の関連装置を本事業で活用する。

なお、九州大学、日立製作所、大阪大学の共同研究として、電子線ホログラムのノイズ除去に関わる技術開発を進めている（JST-CRESTに関わる研究課題）。平成31（2019）年度は、同ノイズ除去技術の実試料への応用に取り組む計画である。本事業の実施課題においても、電子線ホログラムのノイズ除去と、それに伴う位相解析精度の向上が望まれる事例が多く、同技術を積極的に活用する。

#### 【機関名：国立大学法人東北大学】

##### ① 利用支援体制の構築

本機関では、平成31年度（2019 年度）より前任者の退官に伴い、多元物質科学研究所の所長を業務主任者とし、電子線ホログラフィーを専門とする担当責任者（研究者）に加え、高い技術力を有する技術室の実施担当からなる支援体制を整備し、日本電子(株)製の加速電圧300kV分析電子顕微鏡JEM-3000Fをホログラフィー観察に活用する。またこれまでに当研究所で開発された各種試料ホルダ：磁場印加ホルダを中心に、2探針ピエゾ駆動ホルダ、光照射ホルダ、熱電子照射ホルダ、冷却・加熱ホルダを活用し、共同研究に供する。なお、本事業では業務担当職員（学術研究員）1名を雇用する。

##### ② 共用機器

加速電圧300kV分析電子顕微鏡

##### ③ 人材育成

国立大学法人東北大学（以下「東北大学」という）の加速電圧300kV分析電子顕微鏡の実験補助と装置メンテナンスに必要な人材は、東北大学多元物質科学研究所の技術室に所属している。様々な研究内容に対応できるように、担当技術職員に対して実施担当が電子線ホログラフィーの基礎から応用までを指導し、専門的な情報を共有する。

学生に対して試料加工とホログラフィー観察の基礎のセミナーを行い、電磁場解析の重要性についての説明を行う。

その他、5大学附置研究所による「ダイナミック・アライアンス」などの共同研究の場に於いて、研究討論を通じて電子線ホログラフィーの解説を行う。

④ ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等

装置利用課題の経験を蓄積し試料準備やデータ解析法のノウハウを蓄積して、計測業務と解析業務の効率化と迅速化に役立てる。また、技術の普及と利用者の拡大に活用する。

最近の東北大の取組として、電子回折が位相再生像に及ぼす効果の研究や、電場変動を検出する手段としての振幅再生像の新しい活用方法等の技術の高度化を進める。

⑤ その他

利用料収入は、装置の維持管理に充てられる。東北大学では大学の装置利用を外部に公開する場合、その利用料金は予測される維持管理・修理費を基に大学側で算定されており、プラットフォームの利用料金もこれに準じたものとなっている。装置を維持するにあたり、平成29年度までは利用料収入は年度を跨いだ予算執行が学内の運営規則で認められていなかったが、平成30年度から運営規則が改善され、利用料収入による財源は次年度に繰り越すことを可能となったことで、高額なメンテナンスにも対応が可能になりつつある。このように学内でも持続的な運営のための改善が進められている。

(iii) 協力機関の取組状況

協力機関として国立研究開発法人理化学研究所創発物性科学研究センターは日立製作所と共同で電子線ホログラフィーの研究開発を長年推進してきた。装置共用の実施機関としては参画しないが、電子線ホログラフィー技術の発展のための必要に応じて技術的な協力が相互にできる体制にある。たとえば研究会の共催や計測技術の課題解決などで協力する。

もう一つの協力機関である大阪大学超高压電子顕微鏡センターは超高压電子顕微鏡の共同利用に関して長年の実績があり運用上の多くのノウハウを蓄積していることから、主に運用面での各種アドバイスを得る。

## 2. 2 実施内容（代表機関）

【機関名：株式会社日立製作所研究開発グループ基礎研究センタ】

### ①プラットフォーム運営体制の構築

#### 1) プラットフォーム実施機関、協力機関、事業支援機関と連携するための取組

代表機関のコーディネーターとそれを補助する実施担当、および業務主任者でプラットフォームのリエゾン業務とコーディネーター業務をおこなった。それぞれの機関のサポート部門は、運営、広報、財務等の業務をサポートした。運営委員会は、コーディネーター、各機関の業務主任者、担当責任者および実施担当で構成され、プラットフォームの運営指針を決定した。具体的には表1に挙げるように、代表機関と3つの実施機関の間でおもに電話会議と電子メールを用いた。運営委員会の主要な役割として課題審査があり、そこでは申請された装置利用課題の採択可否を技術的観点で検討した採否案を、実施機関以外の有識者であるアドバイザー2名に承認いただくことで決定した。なお、この表には個別の情報交換のためのやりとりは含まない。下記の表では日立製作所を日立、ファインセラミックスセンターをJFCC、九州大学を九大、東北大学を東北大と略す。

表1 平成31年度に実施した運営委員会

| 実施日      | 参加機関                     | 実施形態 | 議題                        |
|----------|--------------------------|------|---------------------------|
| H31/4/9  | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール  | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択2件 |
| H31/4/16 | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール  | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択4件 |
| R1/5/8   | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール  | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択2件 |
| R1/6/6   | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール  | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択2件 |
| R1/7/12  | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール  | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択2件 |
| R1/7/29  | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール  | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択1件 |

|          |                          |     |                             |
|----------|--------------------------|-----|-----------------------------|
| R1/8/21  | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 1 件 |
| R1/9/9   | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 1 件 |
| R1/10/1  | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 3 件 |
| R1/10/9  | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 2 件 |
| R1/10/30 | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 1 件 |
| R1/12/16 | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 2 件 |
| R2/1/6   | 日立、JFCC、九大、東北大<br>アドバイザー | メール | 課題採否案の審議<br>課題採否案の承認：採択 1 件 |

## 2) 他のプラットフォームと連携するための取組

平成31年度は他のプラットフォームとの連携が必要となる利用課題はなかったため技術的な連携は行なわなかったが、令和元年9月4日～6日に幕張メッセで開催されたJASISの展示会場において他のプラットフォームの担当者とプラットフォーム運用面の課題を共有した。また、各プラットフォームが連携して今後の取り組みの方向性を検討するプラットフォーム連絡協議会を3回（令和元年9月19日、11月13日、令和2年1月21日）開催した。コーディネーター、業務主任者及び実施担当が共用プラットフォーム事業をより浸透、活性化させて今後継続発展するための課題や今後の施策を議論した。その内容は上記連絡協議会の代表者がまとめて文部科学省で開催された第4回研究開発基盤部会にて報告した。

## ②利用支援体制の構築

リエゾン業務とコーディネーター業務を代表機関に置き、担当責任者、コーディネーター、実施担当1名の合計3名で実施した。

業務主任者（担当責任者を兼ねる）はプラットフォームの運営と支援体

制構築に関わる全体とりまとめを担当した。コーディネーターおよび実施担当1名は、ホームページの管理、装置利用者への対応、試料形状や加工法についての相談および計測試料の受け渡しの他の実施機関との連携、会議の開催等、より具体的には、装置利用の申し込みに対する窓口業務、申し込まれた課題の内容を検討する運営委員会（電話会議や電子メールを含む）の設定と進行、仮決定された採択課題をアドバイザーに承認いただく作業、JASISをはじめとする関連学会での広報活動（具体的には、ホームページやパンフレットなどの広報ツール用コンテンツの準備とそれらの制作者への発注、学会での展示ブース申し込みや各種研究会でのプラットフォームの紹介等）などを担当した。

また、具体的な支援環境は下記のとおりである。

1. 装置共用ユーザーである外来者の情報セキュリティを確保できるスペースの確保及び個室を完備した。ネット環境、ドアロック、室内備品（机・椅子等）等である。

2. 取得した大容量画像データを実施機関とユーザーがインターネット環境からIDとパスワードを取得してリモートアクセスできるシステムを、日立製作所の原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡と九州大学の加速電圧300kVホログラフィー電子顕微鏡に装備した。ユーザーの利便性と効率を考慮して上記システムを利用するか否かは個別に判断した。その結果、平成31年度は日立製作所と九州大学との間で技術情報を共有することだけに利用した。

課題募集方法は、装置利用者の利便性を考慮して締め切りは設けずにいつでも申し込みを受け付け、その都度、運営委員会を電子メール会議により実施して採択可否と実施機関の決定を行う方法をとった。

実施機関や利用装置の決定に際しては、ユーザーの要求する計測の仕様に基づいて共用機器の性能や特徴と利用者の利便性も総合的に判断して決定した。そして、その案をアドバイザーとして委嘱した外部有識者にその都度、電子メールにて確認してもらい、承認を受けたうえで最終決定しユーザーに連絡するという方法をとった。また、運営委員会ではそれぞれの実施機関における課題の進捗状況共有も電子メールを用いて随時行った。さらに、いずれの利用形態でも事前に申し出があれば非公開の案件も受け付けた。

使用する装置が決まった段階でその装置を保有する実施機関がユーザーの対応をすべて行った。共用機器の使用料金は、共用を実施する各実施機関の口座にそれぞれ直接振り込んでもらう形をとった。そうすることで、ユーザーは利用する装置を所有する機関とのみ直接やり取りをするだけで

済むこと、および、代表機関から実施機関口座への振込み手続きが不要になるという二つの効率化が図れた。なお、各実施機関がユーザーに発行する請求書や振込み証拠書類等の写しは代表機関がまとめて管理した。

また、協力機関からのアドバイスを受ける際には、特に代表機関が間に入らず、課題に取り組む機関がそれぞれ理化学研究所（以下、「理研」という。）の研究者と技術的なディスカッションを行った。また、平成31年度は、相談を受けた利用課題において他のプラットフォームで取り組むのにふさわしいものはなかったため、他のプラットフォームに紹介することとはなかった。

日立製作所は、原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡（1.2 MV）と超高圧ホログラフィー電子顕微鏡（1 MV）の2台の超高圧ホログラフィー電子顕微鏡とホログラフィー電子顕微鏡（350 kV）の3台の装置を共用することを主な業務とした。担当責任者および実施担当の大半は電子顕微鏡技術者であり、共用とそのサポートを行った。電子顕微鏡技術者以外の実施担当は財務、渉外、事務などの業務を担当した。なお、代表機関では今後の電子線ホログラフィー技術を担う人材として平成31年4月にポスドク1名を正社員として採用した。本事業においては実施担当としてホログラフィー計測法に関する支援（試料作製、計測条件、データ解析等）を行った。

### ③ワンストップサービスの設置

プラットフォーム専用ホームページの維持管理と装置利用の申し込み・問い合わせ窓口、研究実施に関する覚書締結などは代表機関で一本化することで、利用者からのワンストップサービスとしての利便性を図った。なお、前述の通り、装置利用に関するすべての対応は利用した装置を所有する実施機関で行ったため、装置利用料の支払い口座は実施機関ごとに設けた。また、プラットフォーム専用ホームページ（[https://www9.hitachi.co.jp/atomicscale\\_pf/](https://www9.hitachi.co.jp/atomicscale_pf/)）は平成30年度に引き続き公開するとともに英語版を公開した。このホームページに問い合わせのメールアドレス [atomic-scale@rdgml.intra.hitachi.co.jp](mailto:atomic-scale@rdgml.intra.hitachi.co.jp) や装置利用申し込み方法を掲載した。このホームページへの平成31年4月1日から令和2年3月31日までのアクセス数は7万4千余りであった。特に顕微鏡学会が終了した令和元年9月以降は一日平均240件程に増加した。コーディネーターは、プラットフォーム専用ホームページの維持管理と装置利用の申し込み・問い合わせ窓口、研究実施に関する覚書締結などを代表機関で一括に運営し、利用者から見てワンストップサービスとなるように



運営した。すなわち、利用申し込みは代表機関のコーディネーターが対応し、申し込み・問い合わせ、装置利用課題の内容のヒアリング、研究実施に関する覚書締結など利用装置が決まるまでの対応をすべて行った。利用装置が決定した後は各実施機関で対応者をあて、利用者へのサービスをワンストップで行った。

#### ④共用機器

代表機関の日立製作所が管理する代表的な共用機器は写真1に示す二台の超高圧ホログラフィー電子顕微鏡である。1. 2MV原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡は高加速化による高い透過能だけではなく、世界で唯一超高圧電子顕微鏡用の収差補正器を内蔵することにより空間分解能の面でも優れた性能を保持している。また、1MVホログラフィー電子顕微鏡は室温から極低温( $\sim 5\text{ K}$ )に至る温度を安定に実現する試料冷却機構のほか、試料に対して任意の方位から磁場印加可能な機構を備えている。上記二台の他、ホログラフィー電子顕微鏡(350 kV)も共用機器として保持している。



写真 1 代表機関の主な共用機器

#### ⑤人材育成

各実施機関で行われた、若手研究者向けのセミナーの開催や若手研究

者の育成の取り組みに関して、代表機関としてその企画をとりまとめてその実施内容をホームページに掲載した。なお、代表機関では今後の電子線ホログラフィー技術を担う人材として平成31年4月にポスドク1名を採用し、OJTとしてホログラフィー計測法に関する支援を行った。

#### ⑥ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等

超高分解能の電磁場計測に関するノウハウの蓄積が着実に進んだ。このノウハウには、CREST・さきがけ複合領域「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」の研究により蓄積した手法に関するノウハウも含まれる。また、データの共有という観点では、平成31年度に実施した利用課題の報告をまとめた冊子を作成し、実施機関、アドバイザー、装置利用者に配布した。

利用システムの高度化に関しては、原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡の大容量画像データをアップして、ライセンスされたユーザーが閲覧できる専用クラウドシステムを運用した。前述のように、ユーザーの利便性と効率を個別の課題ごとに考慮して上記システムを利用するか否かを判断した結果、ユーザーとのデータ共有には使用せず、日立製作所と九州大学とのデータ共有のみに利用できるような環境を整備し、九州大学側の実施担当に利用方法の実習及び指導を実施した。

また、装置利用テーマにおいて新たな機器開発の具体的課題を見出せた場合は、装置メーカーや試料ホルダ専門メーカーなどと連携して開発提案ができるようにメーカーとは密接な関係を維持した。平成31年度には共用機器である原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡（1.2MV）の加速電圧の選択肢として400kVの条件を追加した。直接の目的は、前述のCRESTの研究テーマ遂行であるが、試料に最適な照射エネルギーの選択肢を広げるため共用において有用な機能向上である。また、大規模な機器の更新による機能向上は、競争的資金や代表機関または実施機関の独自開発予算を確保することで実施していくこととなるが、平成31年度には新たな開発に着手することはなかった。

#### ⑦コミュニティ形成、国際的ネットワーク構築

平成31年度はユーザー層の拡大のため、令和元年9月4日～6日に幕張メッセで開催されたJASIS 2019にて紹介ブースの開設およびポスター展示を行った。特に期間中に行われた文部科学省先端研究基盤共用促進事業シンポジウムの参加者や本事業のホームページを閲覧して訪

れた合計 17 名の研究者・技術者からは、装置に関する技術的な質問や装置利用に関する具体的な問い合わせを頂き、適時対応した。

令和元年 6 月 17 日～19 日に名古屋国際会議場で開催された日本顕微鏡学会学術講演会、令和元年 9 月 24 日～27 日に京都市で開催された日本磁気学会第 43 回学術講演会、および令和元年 11 月 18 日～19 日に東京で開催されたナノテスト学会第 39 回シンポジウムでポスター展示により広報活動を実施した。日本顕微鏡学会および日本磁気学会の各会場では、予稿集へ挿入した広告を見て来たという参加者から、現在抱えている実験上の課題についての相談を受けた(各 1 件)。これらに関しては当プラットフォームの装置利用課題に相応しい内容と判断し、短期間のうちに審査委員に諮り、正式な装置利用テーマとして実施した。なお、これらの広報宣伝活動の一つの特筆すべき成果として、ヨーロッパの研究機関に所属する研究者が本事業を利用したことがあげられる(表 2 の課題番号 20)。

#### ⑧その他

##### 1) 装置利用結果の件数と概要

代表機関は、平成 31 年度の装置利用課題の受付けと結果の取りまとめを行ったので 4 実施機関で実施した課題の概要をこの項においてまとめて報告する。装置利用を前提とした相談は 25 件、利用を前提としない技術相談はゼロ件であった。実際に実施した利用課題も 25 件である。また、実施内容の非公開を希望する案件が 3 件(うち 1 件は特許公開後は公開可)、利用者名・所属機関名のみ非公開を希望する案件が 3 件あった。表 2 には実施内容の非公開案件を除く 22 件の概要を示す。

平成 30 年度につづき利用件数が増えたことについて簡単に説明する。一つは、これまでの広報宣伝活動により本プラットフォーム事業が浸透してきたことがあげられる。二つ目はこれまでの装置利用課題への取り組み実績により同一の利用者からのリピート利用が増加し 8 件あったこと、そして、三つ目に前述の CREST での研究成果の技術の適用により利用課題をこなす効率が向上したことがあげられる。

表2 平成31年度に採択した装置利用課題

| 番号 | 提 案 内 容                                                                                                                                                                                                              | 提案機関      | 実施機関 | 受付日<br>採択日   |
|----|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|------|--------------|
| 1  | <b>半導体多層膜の電位分布観察（1）</b><br>電子線ホログラフィーを用いて有機半導体多層膜試料内部の二次元電位分布を解析する。                                                                                                                                                  | 非公開       | JFCC | 4/1<br>4/9   |
| 2  | <b>キラル単結晶の磁気構造解析</b><br>ローレンツ顕微鏡法を用いてキラルな結晶構造を有する材料の磁気構造解析を行う。実空間観察の利点を活かし、中性子小角散乱では検出されていないキララせん磁気秩序やキラルソリトン格子の観察をめざす。                                                                                              | 大阪府立大学    | 日立   | 4/1<br>4/9   |
| 3  | <b>電子線ホログラフィーを用いたハイブリッドナノ粒子の形態・電位分布観察</b><br>有機-無機ハイブリッドナノ粒子、或いは金属-酸化物複合ナノ粒子の形態と電位分布を調査する。その観測結果をもとに、材料機能の発現機構を考察する。                                                                                                 | 東北大学      | 九州大学 | 4/11<br>4/17 |
| 4  | <b>VO<sub>2</sub> 薄膜の微細構造と電位分布の解析</b><br>VO <sub>2</sub> 結晶に関わる前年度までの研究を踏まえて、高次なデバイス機能が期待される h-BN/VO <sub>2</sub> 薄膜の結晶学的微細構造と電位分布に関わる詳細を、明らかにする。                                                                    | 大阪大学      | 九州大学 | 4/11<br>4/17 |
| 5  | <b>電子線ホログラフィーを用いた遷移金属酸化物のドメイン構造解析</b><br>マグネタイト（Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ）の Fe サイトの一部を、磁性遷移金属で置換した（Co,Fe,Mn） <sub>3</sub> O <sub>4</sub> 系酸化物のドメイン構造を調べる。特に、この試料が示すチェッカーボード型のドメイン構造でどのような磁化分布が実現しているのかを明らかにする。 | 九州工業大学    | 九州大学 | 4/11<br>4/17 |
| 6  | <b>GaN 半導体内部の電位分布観察</b><br>Mg を導入した n-GaN 断面試料のキャリア分布を、電子線ホログラフィーで観察する。                                                                                                                                              | 産業技術総合研究所 | JFCC | 4/16<br>4/17 |

|    |                                                                                                                                                                 |             |      |              |
|----|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------|------|--------------|
| 7  | <b>HPT 加工した純鉄における磁気ナノ構造の観察</b><br>High Pressure Torsion (HPT)加工した純鉄特有の数 10 nm サイズの spin misalignment の構造的起源をローレンツ法による磁区観察像より探索する。                               | 日本原子力研究開発機構 | 日立   | 4/26<br>5/23 |
| 8  | 非公開                                                                                                                                                             | 非公開         | 東北大学 | 5/8<br>5/23  |
| 9  | <b>ZnO ナノワイヤー内部の光照射電子線ホログラフィー計測</b><br>ZnO ナノワイヤーの試料について、電子顕微鏡内で光を照射し、ナノワイヤー内部の電位分布に変化が生じるかどうかを実験的に確認する。                                                        | 九州大学        | JFCC | 6/4<br>6/2   |
| 10 | <b>GaN/AlGaN ヘテロ界面の電子線ホログラフィー計測</b><br>GaN を用いた HEMT デバイスに形成されるヘテロ界面中の 2 次元電子ガスの二次元電子ガス層の観察。                                                                    | 非公開         | JFCC | 6/4<br>6/2   |
| 11 | 非公開                                                                                                                                                             | 非公開         | 日立   | 7/12<br>7/22 |
| 12 | <b>Electron holography observation of CdTe semiconductor</b><br>II-VI 化合物半導体である CdTe を用いた放射線検出デバイスに生ずる欠陥や接合部のポテンシャル変化の解析に必要なパラメータ（透過可能な試料厚限度、内部電位、平均自由工程）を測定する。 | 沖縄科学技術大学院大学 | 日立   | 7/12<br>7/22 |
| 13 | <b>電圧印加時 GaAs p-n 接合試料の不活性層の電位変化の評価</b><br>GaAs p-n 接合(ドーパント濃度 $10^{18}\text{cm}^{-3}$ )試料の表面不活性層の状態変化を電子顕微鏡内でバイアス電圧を印加し評価する。                                   | 古河電気工業株式会社  | JFCC | 7/16<br>8/20 |
| 14 | <b>ヘテロ界面に形成される 2 次元電子ガス (2DEG) の観察</b><br>GaN を用いた HEMT デバイスの開発において、ヘテロ界面に形成される 2 次元電子ガス (2DEG) の様子を直接評価する。今回は GaN/AlGaN 基板の表面において、デバイ                          | 住友電気工業株式会社  | JFCC | 8/20<br>8/22 |

|    |                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |         |      |               |
|----|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|------|---------------|
|    | スプロセス処理依存性を評価する。                                                                                                                                                                                                                                                                                   |         |      |               |
| 15 | <b>電子線ホログラフィーと探針ホルダを活用した材料の電気特性評価</b><br>探針を内蔵した試料ホルダを用いた、電子線照射前後の高抵抗材料（イオン液体や絶縁材料）の周辺の電場分布観察（電子線ホログラフィー）や電気伝導性（電気抵抗測定）のその場観察・解析を試みる。                                                                                                                                                              | 理研・CEMS | 東北大学 | 9/9<br>9/11   |
| 16 | <b>一つの電子計測器と二人の観測者による電子計測実験</b><br>量子力学の観測問題の一つの考え方である「波束は人間が観測を行ったときに収束し、いわゆる「事実」は決定される」ということの実験を試みる。極端に弱い電子線の Single Electron Counting Detector を用いた計測結果を 2 人の独立した観測者が記録し実験後にその結果を比較検証する。                                                                                                        | 名城大学    | 日立   | 9/18<br>10/8  |
| 17 | <b>電子線ホログラフィーを用いたアモルファス磁性合金の結晶化過程と磁気特性の評価</b><br>Fe-B-Si 系を代表とするアモルファス磁性合金での結晶化過程に伴う結晶構造/微細構造変化と磁気特性/磁氣的微細構造の変化をローレンツ顕微鏡法および電子線ホログラフィーで調査する。その観測結果をもとに、磁気特性を考察する。                                                                                                                                  | 大阪府立大学  | 九州大学 | 9/28<br>10/8  |
| 18 | <b>Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> サブミクロン中空粒子の磁化状態観察</b><br>400～700nm 径のマグネタイト（Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ）固体粒では T=10K～300K での低磁場(300～-500Oe)で spin vortex 構造の形成が示唆されている。またシミュレーションでは試料形状を中空粒子とした場合は、固体粒子で予想される vortex 軸が印加磁場方向を向いた構造に加えていくつかの不均一状態の発現も予想されていることから、中空マグネタイト試料を用いた電顕による磁化状態の観察を試みる。 | 岩手大学    | 東北大学 | 9/30<br>10/8  |
| 19 | <b>半導体多層膜の電位分布観察（2）</b><br>電子線ホログラフィーを用いて有機半導体多層膜試料内部の二次元電位分布を解析する。                                                                                                                                                                                                                                | 非公開     | JFCC | 10/8<br>10/24 |

|    |                                                                                                                                                                                                                             |                                 |      |                   |
|----|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------|------|-------------------|
| 20 | <b>Study of Radiation Damage from High-Energy Electrons on Organic Molecules</b><br>電子回折パターンを用いた構造解析では MeV 級の加速電圧の電子線を用いることで、多くのメリットが得られる一方で試料の照射損傷が課題となる。本研究では有機分子試料を用いて超高压電子線のドーズ量による回折パターンの変化を記録し、試料が電子線から受ける損傷の影響を評価する。 | Paul Scherrer Institut<br>(スイス) | 日立   | 10/8<br>10/24     |
| 21 | <b>p 型 GaN 半導体における電位分布観察</b><br>一般的に n 型よりも低い活性化率を示すといわれる p 型不純物を導入した半導体 (p-GaN) にて、断面観察用の試料を作製し、膜の深さ方向に形成される電位分布を、電子線ホログラフィーを用いて観察する。                                                                                      | 産業技術総合研究所                       | JFCC | 10/29<br>11/7     |
| 22 | <b>FeAl 合金の塑性誘起強磁性と力学機能の相関</b><br>FeAl 合金を FIB 加工により薄片化し、膜内部に生成した転位の分解により形成されるリボン状の Anti-Phase Boundary の磁性を観察する。                                                                                                           | 京都大学                            | 日立   | 10/29<br>11/7     |
| 23 | <b>非公開</b>                                                                                                                                                                                                                  | 非公開                             | 日立   | 11/8<br>12/23     |
| 24 | <b>Fe-X 系軟磁性粉末の磁気特性に与える結晶構造の影響</b><br>結晶学的な微細構造と磁区構造の相関解明に注視した解析を、Fe-X 系軟磁性粉末 (薄片化した試料) を用いて明らかにする。試料は直径約 300~100 $\mu$ m の鉄粉、300 kV-TEM による電子線ホログラフィーとローレンツ顕微鏡法を適用する。                                                      | 産業技術総合研究所                       | 九州大学 | 11/14<br>12/23    |
| 25 | <b>GaAs p-n 接合試料の電子線ホログラフィーにおけるドーズレート依存性の評価</b><br>p-n 接合(ドーパント濃度 $1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ )空乏層に生ずるビルトイン電位の、電子線ホログラフィー観察時における電子線照射の影響を評価する。                                                                        | 古河電気工業株式会社                      | JFCC | 12/27<br>2020/1/7 |

## 2) 外部発表に関して

これまでの装置利用成果に関連して平成 31 年度に行われた学術発表および平成 31 年度に新たに掲載された査読付き学術論文は以下のとおりである。

[学術発表]

1. 仲野靖孝ほか、日本顕微鏡学会 75th 学術講演会(名古屋国際会議場)  
2pmD\_I4-15, 2019
2. 重松晃次ほか、日本顕微鏡学会 75th 学術講演会(名古屋国際会議場)  
1pmD\_M3-4, 2019

[査読付き学術論文]

1. S. Anada et al. Microscopy, 68, Issue 2, 159-166 (2019)
2. H. Nakajima et al. Materials Transactions, Vol. 60, 2103-2108 (2019)
3. H. Nakajima et al. Microscopy, 68, Issue 4, 342-347 (2019)

3) その他

装置メーカーとの連携を維持し、共用機器の故障等によるダウンタイムの最短化に努めることで、ユーザーの利便性向上を図った。

4) 装置利用結果

以下、上記 25 件のうち公開可の案件 22 件それぞれの結果について報告する。

**課題番号 1 半導体多層膜の電位分布観察(1)**

- 課題提案者所属機関：非公開
- 課題実施機関：ファインセラミックスセンター
- 研究内容：

**i. 実験の概要(Abstract)**

本課題では、有機半導体膜内部の電位分布を、高感度計測が可能な位相シフト電子線ホログラフィーを用いて観察し、膜内部および界面近傍のバンド変化を実験的に明らかにすることを目的とする。

Si 基盤上に成膜された ITO(Indium Tin Oxide)/有機半導体 2 層/Au/Al 構造を持つ試料について、有機層内部の電位分布を観察した。その結果、2 層の界面をクリアに観察することができ、また、各層内部の電位傾斜(電場)を見積もることができた。これにより、有機層内部のバンド変化を考察することができた。

**ii. 実験内容(Experiments)**

集束イオンビームで加工された厚さ 400~450 nm の断面 TEM 試料(Si 基盤/ITO/有機半導体 2 層/Au/Al 構造)を、電子線ホログラフィーにて観



察した。電位分布計測の精度を向上させるため、2本のバイプリズムを用いたダブルバイプリズム条件にて50枚のホログラム（電子波干渉パターン）を撮影し、位相像は位相シフト法を適用して得た。

### iii. 結果と考察 (Results and discussion)

図1(a)は観察した試料の断面TEM像を図1(b)は(a)TEM像の1次元強度プロファイルである。図1(b)ではノイズを低減するために、図1(a)の水平方向にわたって、強度を積算している。2層で構成される有機層の領域は双方とも電子線の透過成分が大きく、各層での強度の差異は小さいものの、界面位置を決定することができた。このプロファイルから本試料の膜厚は設計通りとなっていることがわかった。図1(c)はこの領域で得たホログラムを、位相シフト法を適用して再生した位相分布像である。有機半導体の2層が極めて明瞭に観察されている。有機層上側（A側層）では位相分布のムラが大きくなったが、これは組成の変化あるいは微結晶によるものと考えている。原因を決定するためには、TEM試料をさらに薄くした上で、元素分析や高分解能観察をする必要がある。

図1(c)から各有機層の界面と位相分布が急峻に変化する位置は一致していないことがわかる。これは、界面に近いB側層のバンドが曲がっていると解釈できる。図2は、図1(c)に示したA-B間の1次元位相プロファイルを示す。一般に膜厚が等しければ位相量は電位に比例するため、図1(c)は1次元の電位プロファイルとみなせる。界面近傍では、大きな位相変化が観察されている。この変化をバンド図で考えると、バンドの変化は下に凸になるため、この部分で電子が滞留していることが予想される。また、各層内では、位相の傾斜（電場に相当）が観察されている。つまり、各層内のバンドが傾斜していることを示している。電場の値を見積もった結果、下層部が1.3~1.5 MV/m、上層部が3.3~3.7 MV/mとの結果を得た。

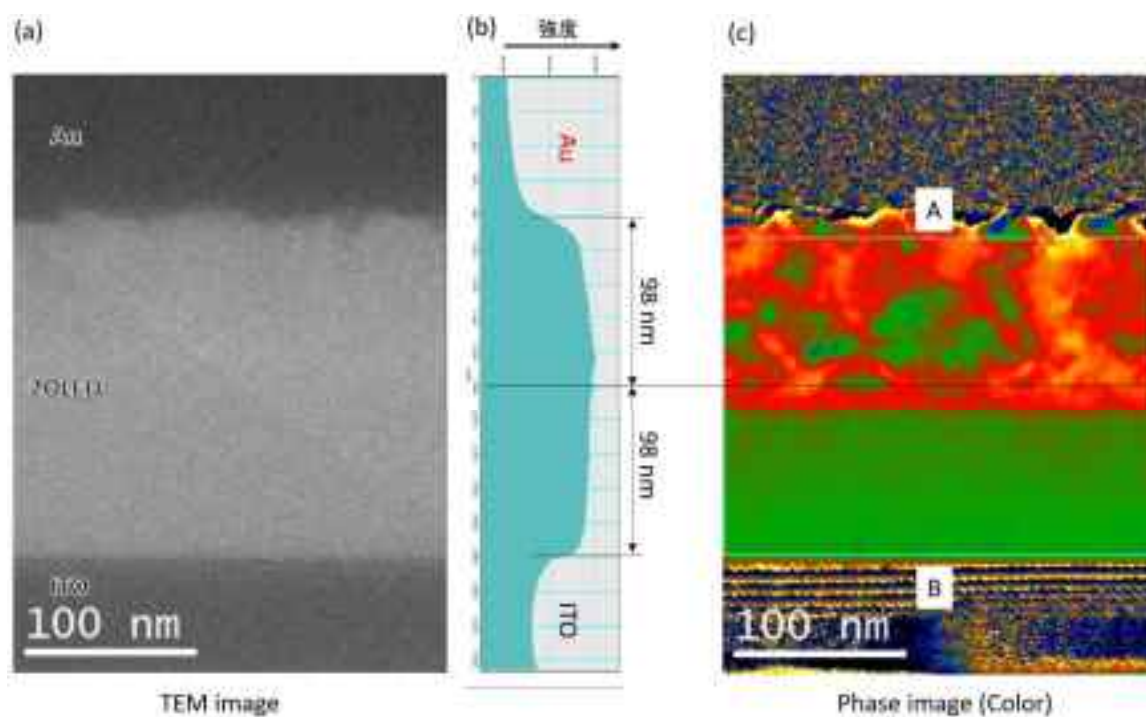


図1 有機半導体層内部の電位分布

(a) 断面のTEM像, (b) TEM像の強度分布, (c) 再生位相像(電位分布に相当)

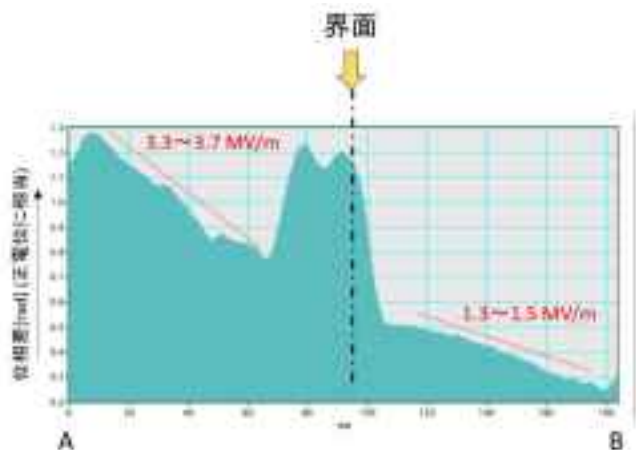


図2 有機半導体層内部の位相プロファイル(図1(c)のA-B間)  
層内部の電位分布プロファイルに相当する

#### iv. まとめ(Conclusion)

有機半導体膜 2 層の電位分布を、位相シフト電子線ホログラフィーを用いて高感度に観察することに成功した。空間分解能は撮影したレンズ条件で決まり、1.8 nm である。観察された電位分布から、有機層内部のバンド

変化を予想することができ、その結果をプロセスや計算にフィードバックさせることで高性能なデバイスの設計・開発に役立つことを期待する。

## 課題番号2 キラル単結晶の磁気構造解析

- 課題提案機関：大阪府立大学
- 課題実施機関：日立製作所
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

ローレンツ顕微鏡法を用いてキラルな結晶構造を有するダイカルコゲナイド物質群での磁気構造解析を行う。代表的物質である  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  単結晶ではキラルな結晶構造を反映して磁気転移温度以下でキラルらせん磁気秩序やキラルソリトン格子が発現することが観察されている[1]。ドーピングイオン種の異なるダイカルコゲナイド物質系においても同様のキラル磁気構造が出現することが期待される[2]。しかしながら Mn 系における中性子小角散乱実験では磁気構造に特有の散乱スポットは検出されておらず、検出感度以上の長周期をもつことが示唆されている[3]。本研究では、ローレンツ顕微鏡法を用いた実空間観察の利点を活かし、 $\text{MnNb}_3\text{S}_6$  単結晶において高精度での TEM 磁気構造解析を行う。

### ii. 実験結果と検討(Results and Discussion)

$\text{MnNb}_3\text{S}_6$  試料は磁気相転移温度 ( $T_c = 45 \text{ K}$ ) 以下にてキラル磁気秩序やキラルソリトン格子を発現することが期待されている[3]。 $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  単結晶 ( $T_c = 130 \text{ K}$ ) に比べて  $T_c$  が低い。そこで、液体ヘリウムホルダに TEM 試料を装着し、1MV-TEM と 1.2MV-TEM を用いてローレンツ顕微鏡観察を行った。図3に  $\text{MnNb}_3\text{S}_6$  の TEM 試料におけるローレンツ像を示す。縞状の磁気構造が明瞭に観察されている。その間隔は 90nm 程度であり  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  より長い周期を示すことがわかる。一方、 $\text{MnNb}_3\text{S}_6$  のローレンツ像では、縞模様が途切れて磁気縞構造の位相欠陥が見出される領域やコントラストの消失した一様磁化と思われる領域と磁気縞構造が共存する様子が見出された。 $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  では TEM 試料全面に渡って一様に正弦波状の磁気縞構造が観察されており、その振舞いは今回  $\text{MnNb}_3\text{S}_6$  で見出されたものとは大きく異なる。キラルらせん磁性体においてキラル

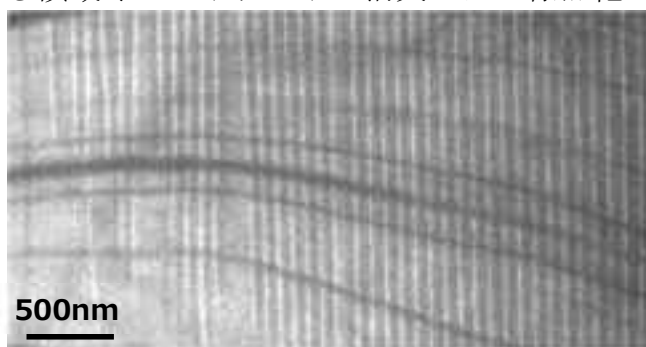


図3  $\text{MnNb}_3\text{S}_6$  試料におけるローレンツ観察像 ( $T=15.5 \text{ K}$ )

らせん磁気秩序の堅固さは、対称性(Heisenberg 型)交換相互作用と反対称性(Dzyaloshinskii-Moriya)交換相互作用、また、磁気異方性の大きさに応

じて決まる。長周期構造や多様な磁気構造が見出されていることから、反対称性交換相互作用が弱く、面内磁気異方性が強いことが示唆される。磁気ダイナミクス実験や数値計算によりこれらの物質パラメータが決定されることが望まれる。また、温度を上昇させると位相欠陥が消失する振舞いが見出された。更に周期の温度依存性[4]を調べたところ、温度を上昇させるにつれて周期が長くなる傾向が見出された。

これまで磁気構造が不明であった Mn 系ダイカルコゲナイド結晶において、実空間で磁気挙動を直接観察することに初めて成功した。詳細な物性を解析するには今回の結果に加えて温度依存性や外部磁場依存性のデータを蓄積する必要であり、今後の研究に期待される。

### 参考文献

- [1] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107202 (2012).
- [2] Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, and J. Kishine, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 112001 (2016).
- [3] Y. Kousaka, Y. Nakao, J. Kishine, M. Akita, K. Inoue, and J. Akimitsu, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **600**, 250 (2009).
- [4] Y. Togawa, J. Kishine, P. A. Nosov, T. Koyama, G. W. Paterson, S. McVitie, Y. Kousaka, J. Akimitsu, M. Ogata and A. S. Ovchinnikov, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 017204 (2019).

### 課題番号 3 電子線ホログラフィーを用いたハイブリッドナノ粒子の形態・電位分布観察

- 課題提案者所属機関： 東北大学
- 課題実施機関：九州大学
- 研究内容：

#### i. 実験の概要(Abstract)

CeO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、SnO<sub>2</sub> などの酸化物に金属 Pt のナノ粒子を担持させた材料系は、典型的な触媒材料として多くの研究に供されている。触媒反応の機構や活性サイトを議論するうえで、仕事関数の異なる酸化物と金属を接合させた際に生じる電荷移動と、それに伴う電気分極（例えば酸化物に生じる空間電荷層の存在など）が注目されているが、ナノ粒子に起因する電気分極は信号量が微弱であり、検出が難しい。本研究課題では電子線ホログラフィーにより触媒ナノ粒子の電位分布の計測を試みた。

#### ii. 実験内容(Experiments)

Lykhach 等 (Nature Mater. 2016) が Pt-CeO<sub>2</sub> 系に対して行った X 線光電子分光の実験結果を参照すると、Pt と CeO<sub>2</sub> の電荷移動によって生じる界面電荷の密度は凡そ 1 電子/nm<sup>2</sup> 程度である。かりに Pt ナノ粒子のサイズを 5 nm と仮定した場合、この電気分極を観測するには 2p/500 程度の極めて高い精度で位相を解析することが要求される。

通常の実験では、このように僅かな位相変化量を解析することが難しいため、本研究では J S T-C R E S T 課題（情報計測領域：九州大学、日立製作所、大阪大学で実施）にて開発を進めている技術の展開を試みた。具体的には、個々の粒子の信号量/情報量が乏しいタンパク質の構造解析（単粒子解析）の概念を参照し、多数のホログラム画像の取得と、その積算平均化による雑音の低減を試みた。

このような解析を行う場合、タンパク質の結晶は構造、サイズ、形態が一樣であるため、同一画像/類似画像の積算平均化が有効となる。これに対して、一般的に触媒系微粒子ではサイズや形態の分散が大きいため、単粒子解析の実験・解析技術をそのまま流用することができない。そこで本研究では、課題申請者が有する微粒子の単分散化、即ちサイズや形態の均一化に関わる技

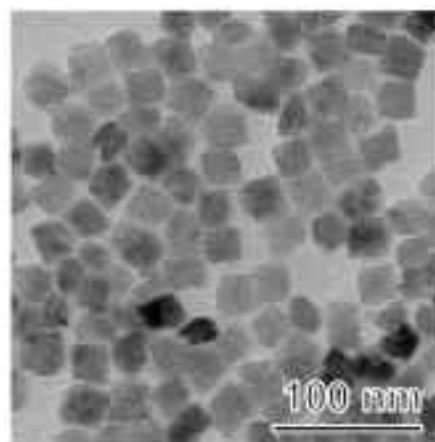


図4. Pt ナノ粒子を担持させるために合成した立方体型 TiO<sub>2</sub> 粒子。

術を駆使して、立方体状の形態制御を施した  $\text{TiO}_2$  粒子（単分散化の実績を有する物質系）を担持体として利用した：図 4 の電子顕微鏡像を参照。

金属ナノ粒子としては、光還元を通して  $\text{TiO}_2$  表面上に付着させることができる Pt を選択した。電子線ホログラフィーは透過電子顕微鏡法の一種であるため、 $\text{TiO}_2$  表面上に付着させた Pt ナノ粒子が入射電子の方向に重なりとデータ解析が複雑となる。このような奥行き方向の重なりを抑えるため、本研究では立方体型  $\text{TiO}_2$  粒子のサイズや、その表面に付着させる Pt ナノ粒子の数密度を緻密に調整した。Pt ナノ粒子のサイズは、今回の試料では 3 nm 程度であった。

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

立方体型  $\text{TiO}_2$  粒子の表面に、Pt ナノ粒子を担持させた試料の透過電子顕微鏡像を図 5 (a) に示す。想定される位相変化量がごく小さいため、本実験では、不要なバックグラウンドとなるグリッドの支持膜（アモルファスカーボン膜）と試料の重なりを避け、図 5 (b) に示す通り真空領域に突出した試料部位を解析の対象とした。データ収集の初期段階では、電子照射に伴うコンタミネーション（カーボン系付着物による試料汚染）のため、不要な位相情報が重畳した。この問題を解決するために、グリッドに分散した試料に対して水素プラズマ処理を施し、その最適化を通して観察時のコンタミネーションを抑制することができた。

図 5 (c) と 5 (d) は、図 5 (b) に記す試料部位の位相再生像を示す。位相像として Pt ナノ粒子の形態を識別することができるが、この一点の画像データのみでは想定される電気分極の情報、即ち Pt ナノ粒子のわずかな帯電の様子や、Pt- $\text{TiO}_2$  の接合に伴う空間電荷層の発生等を確認することは必ずしも容易でない。これに関しては、次年度にも継続して研究を実施する予定である。具体的には、個々の位相再生像に残留収差の補正（解析的な収差の補正）を適用するとともに、多数の画像を用いた積算平均化処理を実施する。多数取得した微粒子画像の処理については、転移学習（機械学習）に基づく効率的な解析も導入する計画である。

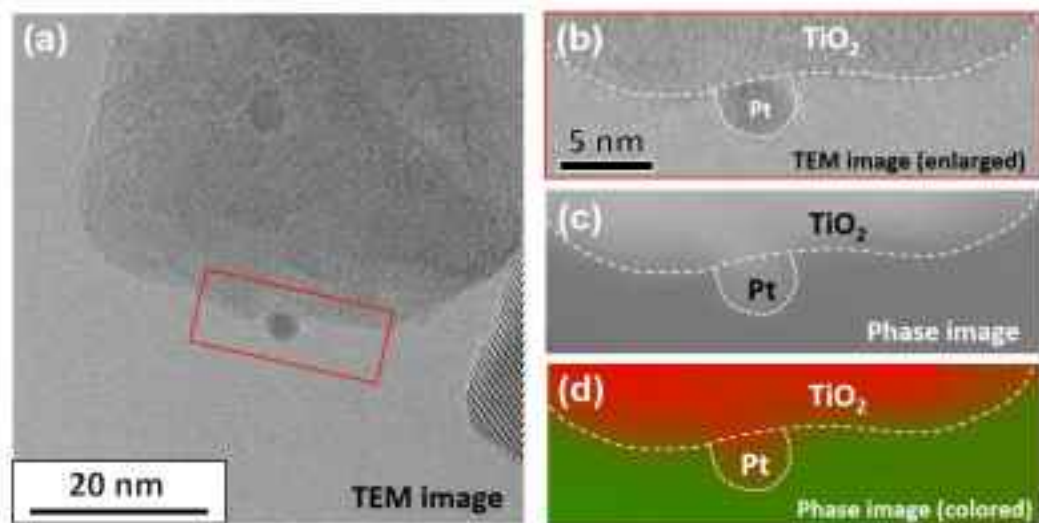


図5 (a)立方体型  $\text{TiO}_2$  粒子の表面に Pt ナノ粒子を担持させた試料の透過電子顕微鏡像

(b) (a) の枠線部分の拡大図、(c) (b) の領域に対する位相再生像、  
(d) (c) 位相変化の様子をカラーで表示した参考画像。



#### 課題番号 4 VO<sub>2</sub> 薄膜の微細構造と電位分布の解析

●課題提案者所属機関： 大阪大学

●課題実施機関：九州大学

●研究内容：

##### i. 実験の概要(Abstract)

二酸化バナジウム (VO<sub>2</sub>) は、電気抵抗の急激な変化を伴う金属-絶縁体相転移を室温近傍で示す物質であり、新規なメモリやスイッチング素子の開発を想定した研究が盛んに行われている。デバイ関連の研究では、従来 VO<sub>2</sub> を酸化チタン (TiO<sub>2</sub>) 等の基板上にエピタキシャル成長した試料が利用されていた。これに対して大阪大学の田中グループは、六方晶窒化ホウ素 (hBN) を基板に用いる新たな材料創製プロセスとその応用展開に取り組んでいる。本研究では電子線ホログラフィーと透過電子顕微鏡観察 (TEM 観察) を組み合わせた複合的な実験を通して、VO<sub>2</sub>/hBN という新規な薄膜試料の構造・形態的特徴の理解を試みた。

##### ii. 実験内容(Experiments)

hBN の基底面である (0001) 面上に、膜厚 40 nm の VO<sub>2</sub> を成膜した。集束イオンビームを用いて同試料を薄片化した後 (図 6 参照)、TEM 観察、HAADF-STEM 法 (高角度環状暗視野走査透過電子顕微鏡法)、および電子線ホログラフィーを用いた複合的な構造・形態解析を行った。

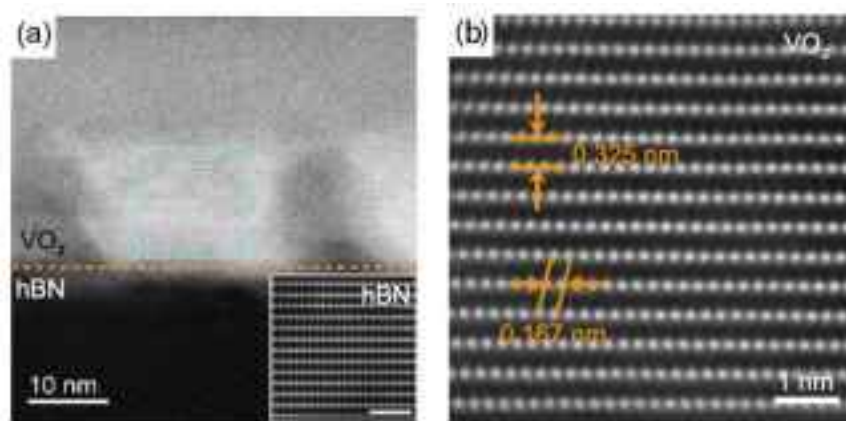


図 6 (a) hBN 基板上に成膜した VO<sub>2</sub> 膜の TEM 像 挿入図は hBN の原子配列を示す HAADF-STEM 像を表す。(b) VO<sub>2</sub> の原子配列を示す HAADF-STEM 像

([ref.] Genchi, Tanaka, et al., Scientific Reports, 9 (2019) 2857.)

##### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

図 6(a) の TEM 像と HAADF-STEM 像が示す通り、本試料では hBN の (0001)

面と、 $\text{VO}_2$  の(110)面が概ね平行となる形態で成膜がなされている ( $\text{VO}_2$  の指数はルチル型構造の指数を利用している)。図 6 (b)に示す HAADF-STEM 像は、(a)の青枠で示す領域 ( $\text{VO}_2$  の領域) から取得したものであり、輝点は原子コラムを表す。このコラム位置を解析した結果、hBN 上に成膜した  $\text{VO}_2$  はその成長方向、即ち同結晶の[110]方向に 1%近い引張り歪を受けていることが確認された。 $\text{VO}_2$  のポアソン比を使って換算すると、面内方向には 0.3%程度の圧縮歪が存在することが予想される。このような格子歪は、 $\text{VO}_2$  を室温付近で単斜晶相 (M2 相) に留める要因となり得る。

この試料系をデバイスとして利用する場合、基板である hBN 結晶と、その上に成膜した  $\text{VO}_2$  結晶との界面にどのような電位分布上の特異性があるか、詳細な評価が望まれる。この点をモチベーションとして、薄片化した試料に対して電子線ホログラフィーの実験を行った。図 7 (a)に薄片化した試料の TEM 像を示す (図 6 とは成膜方向が 90 度異なる構図となっている)。中央に存在する hBN 層は、(0001)面で劈開した薄い hBN 結晶を積層したことを反映して、一部に空隙が存在する。

図 7(c)に示す位相再生像 (電子線ホログラフィーの解析結果) では  $\text{VO}_2$  と hBN の他、保護膜として設けたアモルファスカーボン(C)、および  $\text{SiO}_2$  基板の四物質の静電ポテンシャルの違いを反映したコントラストが確認される。図 7 (d)と(e)は、それぞれ(c)に示す  $X_1$ - $Y_1$  線、 $X_2$ - $Y_2$  線から取得した位相変化曲線である。いずれの曲線においても、hBN と  $\text{VO}_2$  の界面付近でピーク (矢印) が確認される。一方、図 7 (b)に示す TEM 像を詳細に調べると、この薄片化試料では、点線で示す領域で hBN と  $\text{VO}_2$  の重なりが存在する。この試料系の場合、hBN と  $\text{VO}_2$  の結合に関わる力は主にファンデルワールス力であり、薄片化された試料のタワミ (弱いファンデルワールス力を越える力の付加) によっては両相の解離や重なりが誘発されるものと考えられる。このような実験上の問題 (入射電子線方向における両相の重なりと、それに伴うデータ解釈の複雑化) を考慮して、hBN と  $\text{VO}_2$  が示す本来の界面電位分布を考察するためには、薄片化の影響を抑えた試料調製が更に必要である。この点は次年度の継続研究に反映させる予定である。

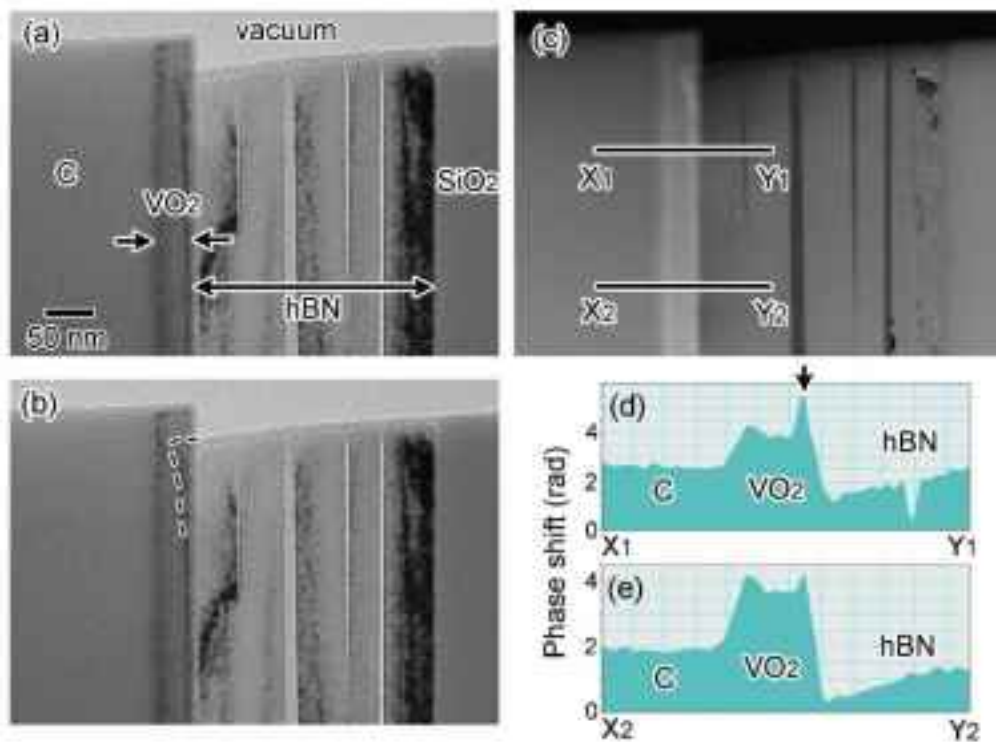


図 7 (a) 薄片化した試料の TEM 像、(b) (a) の画像データに対する補足図、  
 (c) (a) の領域から取得した位相再生像、(d) (c) に示す  $X_1$ - $Y_1$  線から取得  
 した位相変化、(e) (c) に示す  $X_2$ - $Y_2$  線から取得した位相変化

## 課題番号 5 電子線ホログラフィーを用いた遷移金属酸化物のドメイン構造解析

- 課題提案者所属機関：九州工業大学
- 課題実施機関：九州大学
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

高密度磁気記録媒体等の開発を視野に、形状的に異方性のある磁気微細構造の創成に注目が集まっている。本研究で着目する  $(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Mn})_3\text{O}_4$  酸化物も、同様の観点から活発な研究が展開されている。 $(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Mn})_3\text{O}_4$  はスピネル型の結晶構造を有し、遷移金属サイトは Co、Fe、Mn のいずれかの原子が占有する。一方これに熱処理を加えると、Mn-rich な正方晶相（室温で常磁性）と、Mn-poor な立方晶相（室温でフェリ磁性）に相分離し、結果的に磁気異方性に富んだ材料となる。本研究では、この相分離状態における磁化分布・磁区構造の基本形態を電子線ホログラフィーで明らかにすることを試みた。

### ii. 実験内容(Experiments)

$\text{Co}_{0.6}\text{Fe}_{0.9}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$  という組成の多結晶試料に熱処理を施し、図 8 に示すようなラメラ状組織（プレートが入り組んだ材料組織）を成長させた。透過電子顕微鏡(TEM)観察と電子線ホログラフィーの実験を行うために、集束イオンビームによる試料の薄片化を行った。



図 8 薄片化した  $\text{Co}_{0.6}\text{Fe}_{0.9}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$  の TEM 像 ラメラ状組織の存在を示す結果

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

図 8 に示す通り、本試料には幅が 100 nm 程度のプレートが高密度に存在し、特徴的なラメラ状組織を形成している。課題申請者の最近の研究により、このプレートは(1) Mn-rich な正方晶相（室温で常磁性）と、(2) Mn-poor な立方晶相（室温でフェリ磁性）の相分離に由来することがわかって

いる。図8を見ると、プレートの方向が異なる A、B、C の三領域が存在していることがわかる。本観察を行った試料領域は、熱処理を施す前は  $(\text{Co, Fe, Mn})_3\text{O}_4$  スピネル（母相）の単一結晶粒であったが、相分離の結果、図8に示す三領域が生じたことになる。もともとラメラ状の組織（100 nm 幅のプレートが交互に並ぶ状態）は結晶相変態に伴う格子歪を緩和するために発達するものであるが、それよりも大きなマイクロメータスケールの組織（プレート方位が異なる三領域A、B、C）を形成することで、格子歪の緩和が多階層にわたって実現されていることがわかる。

図9に、図8の視野に対して観察された電子線ホログラフィーの実験結果（位相再生像）を示す。結晶の平均内部ポテンシャルによる位相変化は

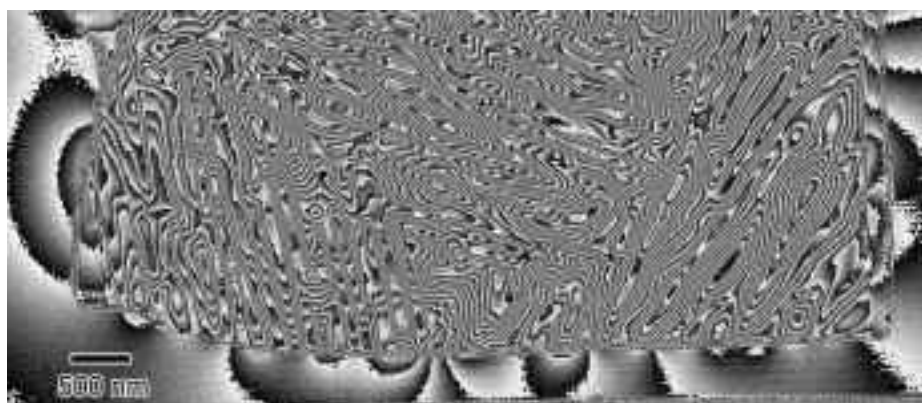


図9 図8に示した領域の位相再生像。明暗の等高線は、磁束の面内成分の分布に対応する。ラメラ状組織が磁気異方性を誘発する様子を示す結果となった

除去しており、図9の結果は、ほぼ忠実に磁場由来の位相変化を与える。より具体的には、同図における等高線（等位相線）は磁束の面内成分、即ち試料面上に投影した磁束線の分布を表す結果となる。図8に示した三種類の領域（プレート方位が異なる A、B、C 領域）に対応して、磁束分布の概形も三領域に区分されている。より微視的には、各領域とも、プレートの長手方向に磁束線が向いており、結晶学的微細構造が誘発する形状磁気異方性の発現を実証することができた。実際に、この形状磁気異方性が発達した結果、試料外部のいたるところで漏洩磁場が発生している。なお図9では、等高線の間隔が粗な部分（磁束密度の低い領域）と、密な部分（磁束密度の高い領域）が交互に配置する傾向を読み取ることができる。この点は、上述した Mn-rich な正方晶相（常磁性）と、Mn-poor な立方晶相（フェリ磁性）の相分離をもとに理解することができる。

## 課題番号 6 GaN 半導体内部の電位分布観察

- 課題提案者所属機関:産業技術総合研究所
- 課題実施機関:ファインセラミックスセンター
- 研究内容:

### i. 実験の概要(Abstract)

GaN系半導体は、優れた特性を多く有しているため、パワーデバイスや光デバイスの材料として研究・開発が行われている。デバイスを作製するうえで、ドーパントによるキャリア濃度分布を評価することは極めて重要である。当プラットフォームでは、ドーパント濃度を段階的に変化させた n-GaN (Si ドープ) 試料のステップ状に変化する電位分布の観察を報告している[1-3]。しかしながら、より実用に近いデバイス評価の観点では、p-GaN (Mg ドープ) の評価も重要である。そこで今回は p 型としての電気特性が確認できている MOVPE で成長した p-GaN とリコイルインプラで作製した p-GaN の評価を試みた。本実験ではサファイア基板上に u-GaN(u は undoped を示す)を成長後、p-GaNを成長した試料を用いた。MOVPE で成長した p-GaN は p 型としての電気特性が確認できているため、電子線ホログラフィーで p-GaN の評価が行えるかの確認を行なった。また、GaN 系半導体は、Mg 濃度が高いと多くの結晶欠陥が導入され、電子線ホログラフィーで観察するのが困難になることが予想される。そのため、MOVPE で作製した試料のアニール前後で SEM や TEM 観察を行なった。

### ii. 実験内容(Experiments)

今回、観察を行なった試料構造の模式図を図 10 に示す。試料は、サファイア c 面基板上に、u-GaN、Mg をドーピングした p-GaN、u-GaN、AlN が成膜されている構造をしている。試料の表面状態は、SEM 観察で確認した。観察条件は、加速電圧: 5 kV、ワーキングディスタンス (W.D.): 15 mm である。TEM 試料は、FIB で作製した。マイクロサンプリングでピックアップを行ない、薄膜加工を実施した。その後、加速電圧: 0.2 kV の Ar イオンミリングでダメージ層のクリーニングを行なった。TEM 観察は、300kV-TEM(日立 HF-3300EH) で実施した。

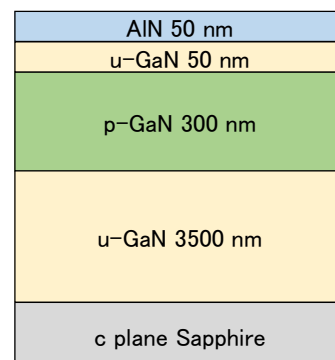


図 10 試料構造の模式図

### iii. 結果と考察 (Results and discussion)

図 1 1 にアニール前後の SEM 観察結果を示す。アニール前の試料は、全面にクラックが確認できる。アニール後の試料は、アニール前と同じく全面にクラックが確認でき、黄破線で示すような黒いコントラストの場所がところどころに確認できた。また、赤破線で示すような剥離している部分もところどころにあった。図 1 2 にアニール後の断面 TEM 観察結果を示す。TEM 像の全面に確認できる黒い点は、FIB 加工によるダメージだと考えられる。Ar イオンミリングの加工時間が短く、ダメージ層を完全に除去できていない可能性がある。(a) が低倍の TEM 像で、赤破線で囲んだ領域の拡大像が (b) (c) になる。(a) より、視野中には数本の貫通転位が存在することが確認できる。(b) (c) より、AlN と GaN の界面に大きな歪みがあることが確認できる。表面 SEM 観察で確認できたクラックは、AlN 層から発生していることがわかった。また、u-GaN と p-GaN の界面は、TEM 像のコントラスト変化からは読み取ることが難しいことがわかった。

### iv. まとめ(Conclusion)

MOVPE で作製した p-GaN を SEM や TEM で観察した。TEM 像の全面に確認できた黒い点は、冷却 FIB 加工で低減できる。また、貫通転位は少なく、電子線ホログラフィー観察は可能だと考えられる。但し、GaN と AlN の界面の歪みは大きく、ホログラムを撮影するときに回折コントラストの影響を受ける可能性があるので、試料構造を検討する必要がある。

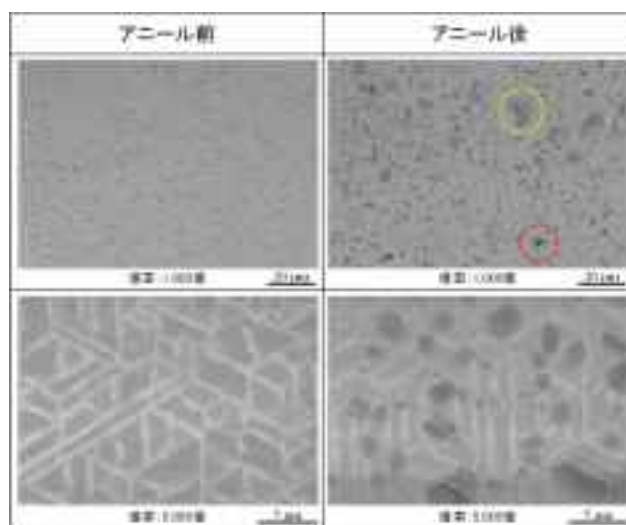


図 1 1 表面 SEM 観察結果(アニール前後)

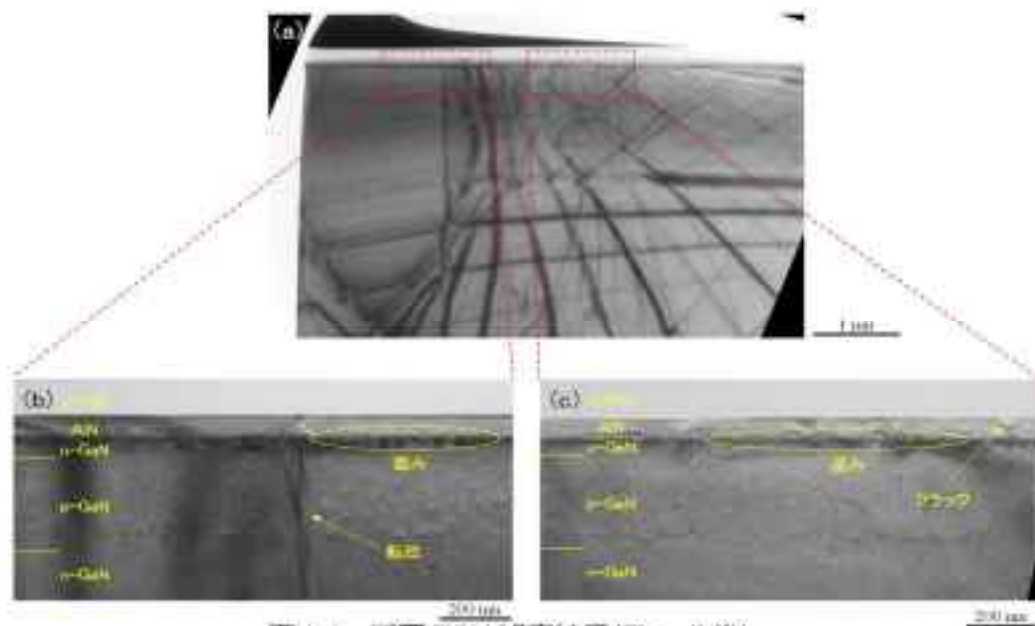


図1-2 断面 TEM 観察結果(アニール後)

#### 参考文献

- [1] 仲野ら、2017 年度 応用物理学会 秋期学術講演会（福岡） 6a-C17-7
- [2] 仲野ら、2018 年度 日本顕微鏡学会 第 74 回学術講演会（久留米） 3aD\_S7-6
- [3] 仲野ら、2019 年度 日本顕微鏡学会 第 75 回学術講演会（名古屋） 2pmG-I4-15



## 課題番号7 HPT 加工した純鉄における磁気ナノ構造の観察

●課題提案者所属機関：日本原子力研究開発機構

豊橋技術科学大学

●課題実施機関：日立製作所

●研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

中性子小角散乱測定により、高圧下ねじり（HPT）加工した純鉄において、1 T 以上の高磁場においても飽和しない磁化を持つ領域（spin misalignment）が形成されていることがわかった。これは、鉄の大きな磁気モーメントを活かした新しい磁性材料開発の可能性を示す重要な結果である。そこで、その構造的起源を解明するため、ローレンツ法を用いて HPT 加工した純鉄の磁区構造を観察し、spin misalignment の実空間での検出を目指す。

### ii. 実験内容(Experiments)

試料として、極低炭素鋼（11 mass ppm C）を用いた。円板状の試料を、図 1 3 に示すように円板状のくぼみを持つ 2 つのジグで挟み、5 Ga 程度の圧縮応力を印加してねじり加工を行った。HPT 加工した試料から集束イオンビーム加工により TEM 用試料を切り出した。

ローレンツ法観察は TEM を用いて行った。デフォーカス量は±300 nm 程度とした。また、対物レンズ磁極による磁場中で、試料を傾けることにより、試料に面内方向の磁場を印加し、磁区構造の磁場による変化を観察した。

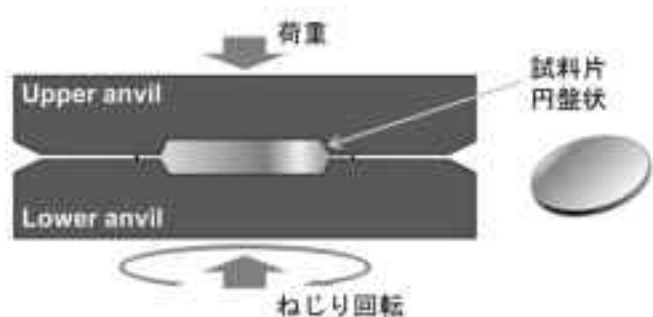


図 1 3 HPT 加工の模式図。

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

図 1 4 にローレンツ法による HPT 加工した鉄の観察結果を示す。試料中に磁壁が観測され、HPT 加工した鉄中の磁区構造を得ることに成功した。観測された磁壁は、

この領域のサイズは、1 T では数 10 nm 程度であり、磁場の増加にともなって小さくなると見積もられた。観測された磁壁は、通常の鉄中に観測さ

れるものと異なり、複雑に曲がりくねった形状であった。これは、過去の報告と一致する結果であり、HPT加工により微細化された結晶粒の粒界の影響を受けたものと考えられる [ref.] Korznikova, J. Microsc. 239 (2010) 239-244. ]。

面内方向の磁場印加による磁区構造観察の結果、磁壁の移動と、約 600 Oe の磁場中でも磁壁が残存している様子を観測することに成功した。また、約 600 Oe の磁場において、一部の粒界付近に2つの磁壁がトラップされ、磁壁に囲まれた微小な領域が形成されていることがわかった。これは、中性子実験によって観測された spin misalignment と同一の領域である可能性がある。今後、その特性について詳細な解析を進める。

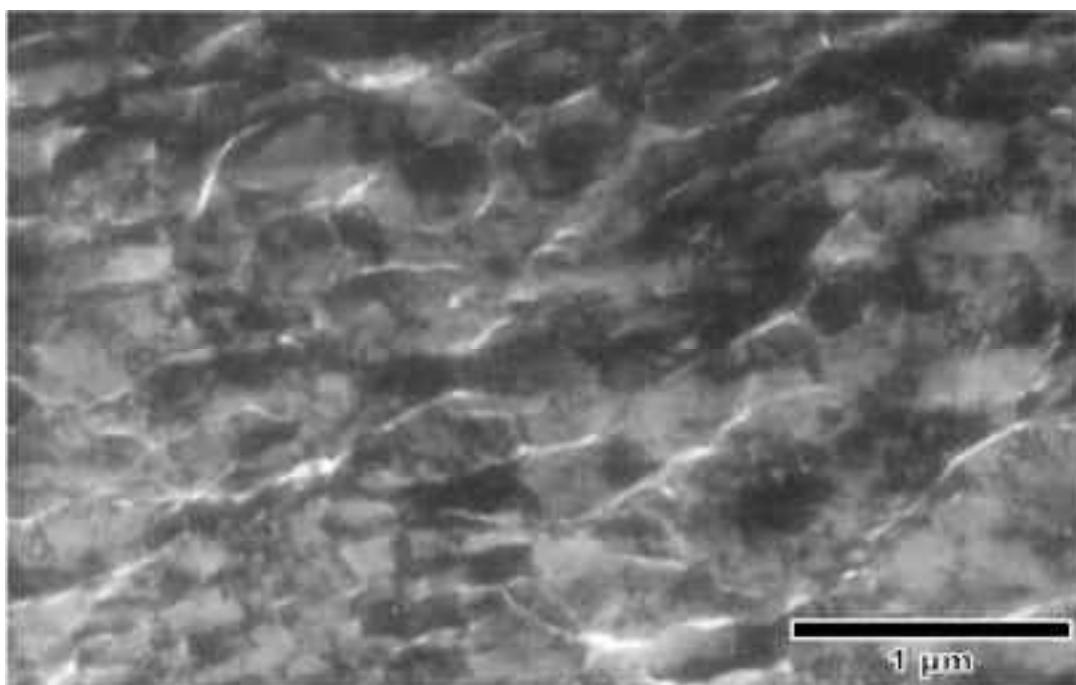


図1 4 HPT 加工した鉄の不足焦点像。(線状の明コントラストは磁壁を示す)

課題番号 8      【非公開課題】につき開示しない

## 課題番号9 ZnO ナノワイヤー内部の光照射電子線ホログラフィー計測

●課題提案者所属機関:九州大学大学院

●課題実施機関:ファインセラミックスセンター

●研究内容:

### i. 実験の概要(Abstract)

II-VI族酸化系化合物材料である酸化亜鉛(ZnO)は、光・電子・磁気機能を有した材料として注目を集めており、センサー、電子デバイスや光デバイスなど幅広い範囲への応用が期待されている。ZnO ナノワイヤーは、バルク結晶にはない特徴を有するため、活発に研究が行なわれている。光照射前後で ZnO ナノワイヤーの電位分布がどのように変化するか評価した。今回は、光照射の有無でホログラムを撮影し、位相再生して位相分布を比較した。

### ii. 実験内容 (Experiments)

ZnO ナノワイヤーは粉体試料であったため、SEM 観察用試料は、試料台に振りかけて作製し、TEM 用試料は、マイクログリッドに振りかけて作製した。試料の状態は、SEM(日立 SU8000)観察で確認した。観察条件は、加速電圧: 2 kV、ワーキングディスタンス(W.D.): 3 mm である。電子線ホログラフィーでの観察は、ZnO ナノワイヤー1 本が独立して存在する場所を探し撮影を行なった。光照射には、波長: 527 nm の LED を使用して実験を行なった。

### iii. 結果と考察 (Results and discussion)

図 15 に倍率: 5,000 倍と 30,000 倍の SEM 観察結果を示す。5,000 倍の SEM 像から、ナノワイヤーは凝集しており、ナノワイヤーでないものも含まれていることが確認できた。30,000 倍の SEM 像からナノワイヤーの直径は、20~50 nm のものが多く、ナノワイヤーの長さ: 1  $\mu\text{m}$  以上あることが確認できた。

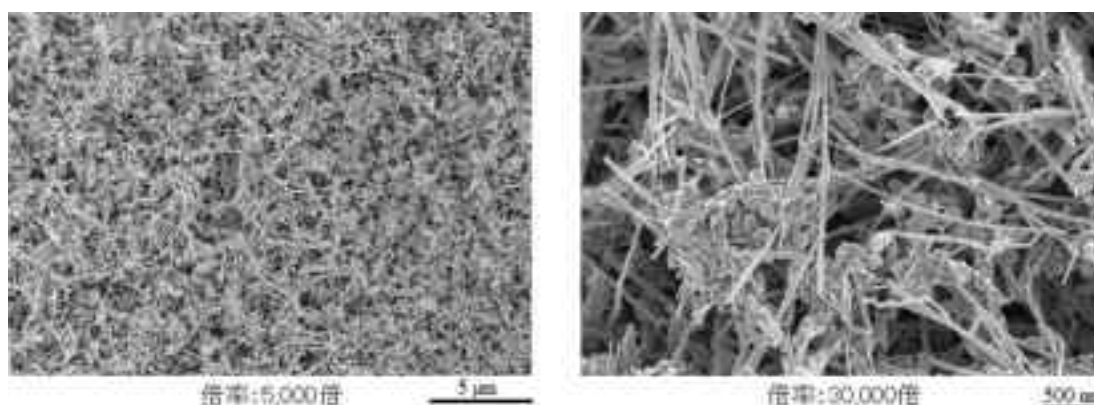


図 15 SEM 観察結果

図16に ZnO ナノワイヤーの TEM 像・位相像・ラインプロファイルを示す。TEM 像より、電子線ホログラフィーで観察した ZnO ナノワイヤーの直径は、30 nm であることがわかる。LED ON と LED OFF の位相像を比較したが大きな違いは確認できなかったため、(a) と (b) の方向でラインプロファイルを取得して比較した。

(a) 方向からのラインプロファイルの 1.5 rad 付近で比較した結果、LED OFF より LED ON の方が直径：2.3 nm 大きくなっていることがわかった。(b) 方向からのラインプロファイルの 1.5 rad 付近で比較した結果 LED OFF より LED ON の方が 4.7 nm が長いことがわかった。以上のことから、波長：527 nm LED を照射することによって位相が変化する領域が広がることがわかった。ただし、LED ON と LED OFF のホログラム撮影時にフォーカスが多少ずれていた可能性もあるので、その影響を加味する必要がある。

#### iv. まとめ(Conclusion)

波長：527 nm の LED 光を ZnO ナノワイヤーに照射して、位相分布がどのように変化するか評価した。その結果、LED 光を照射することで、直径方向で 2.3 nm、長さ方向で 4.7 nm 位相が変化する領域が広がっていることが確認できた。ただし、LED ON と LED OFF のホログラム撮影時にフォーカスが多少ずれていた可能性もあるので、その影響を加味する必要がある。

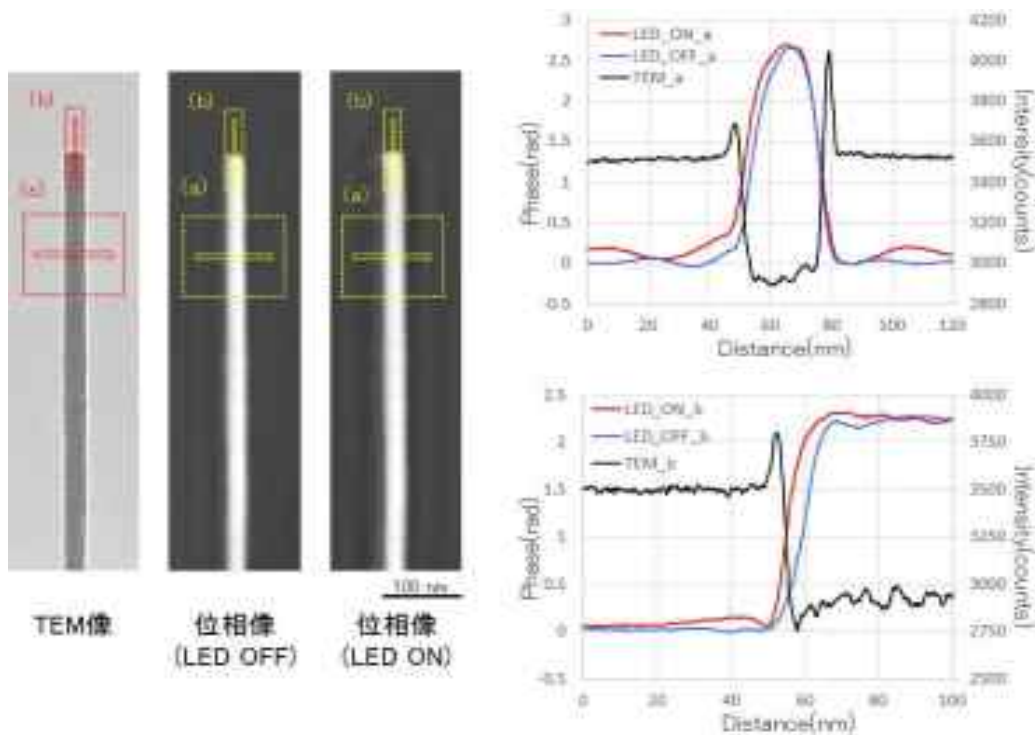


図16 ZnO ナノワイヤーの TEM 像・位相像・ラインプロファイル

## 課題番号 10 GaN/AlGa<sub>N</sub> ヘテロ界面の電子線ホログラフィー計測

- 課題提案者所属機関：非公開
- 課題実施機関：ファインセラミックスセンター
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

GaN系半導体は、高性能な光デバイスやパワーデバイスの材料として期待されている。GaNを用いたHEMT（高電子移動度トランジスタ;High Electron Mobility Transistor）デバイスの開発において、ヘテロ界面に形成された2次元電子ガス層の様子を直接評価することは重要である。今回、GaN/AlGa<sub>N</sub>ヘテロ界面に形成される2次元電子ガス層を電子線ホログラフィーで評価を行なった。GaN/AlGa<sub>N</sub>ヘテロ界面に形成される2次元電子ガス層を電子線ホログラフィーで評価を行なった。今回は、GaN/ AlN/AlGa<sub>N</sub> と GaN/ AlGa<sub>N</sub> で形成される2次元電子ガス層がどのように異なるか比較した。

### ii. 実験方法 (Experiments)

本実験に用いた試料構造の模式図を図 17 に示す。構造は、GaN 上に AlN 層 2nm 成長後、Al 組成 25%の AlGa<sub>N</sub> を 20 nm 成長させた試料と、GaN 上に Al 組成 25%の AlGa<sub>N</sub> を 20 nm 成長させた試料の 2 種類を観察した。TEM 試料は、室温 FIB でマイクロサンプリングを行い、クライオ FIB で膜厚：250～300 nm になるように薄膜加工を実施した。観察は、300kV-TEM(日立 HF-3300EH)でホログラムを撮影し、位相再生は位相シフト法を適用した。



図 17 試料構造の模式図

### iii. 実験結果と検討 (Results and discussion)

図 18 にそれぞれの TEM 像、ホログラム、位相像を示す。GaN/ AlN/AlGa<sub>N</sub> と GaN/ AlGa<sub>N</sub> の試料で、比較したが、TEM 像、ホログラム、位相像に大きな違いは確認できなかった。それぞれの TEM 試料の膜厚を SEM で計測した結果、GaN/ AlN/AlGa<sub>N</sub> の試料が約 260 nm で、GaN/ AlGa<sub>N</sub> の試料が、約 310 nm であった。TEM 試料の膜厚が異なるため、ピークトップの位置がほぼ同じになるように補正した位相像のラインプロファイル結果を図 19 に示す。位相のピーク値から 0.15 rad までの幅の比較では、GaN/ AlN/AlGa<sub>N</sub> は 11.8 nm で、GaN/ AlGa<sub>N</sub> は 12.6 nm となり、GaN/ AlN/AlGa<sub>N</sub> の方が 0.8 nm ピー

ク幅が狭くなった。しかしながらこの値は、ホログラム撮影時のフォーカズずれによる測定誤差の範囲であるため、実験データの蓄積による測定精度の向上を図る必要がある。

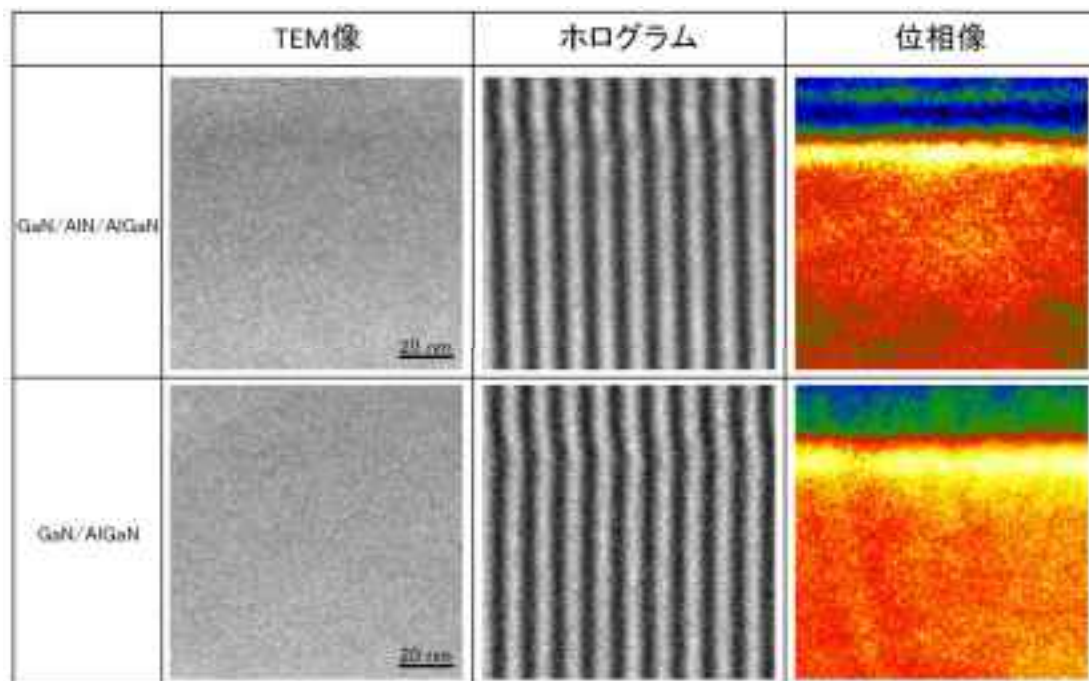


図 18 各試料の TEM 像、ホログラム、位相像

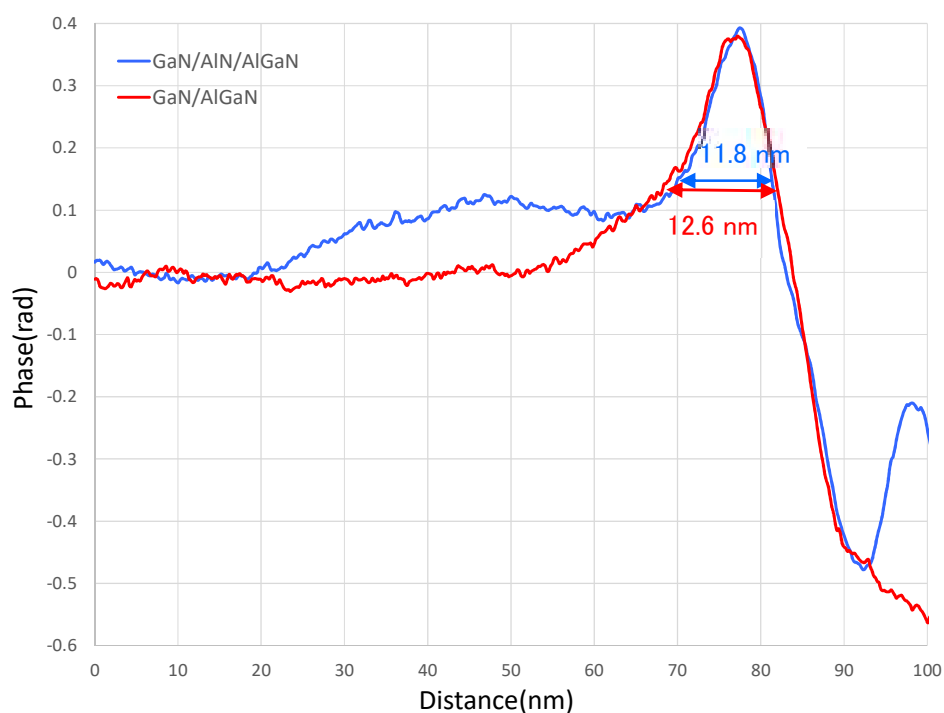


図 1 9 GaN/AlN/AlGaIn と GaN/AlGaIn のラインプロファイル

## 課題番号 11 【非公開課題】につき開示しない

## 課題番号 12 Electron holography observation of CdTe semiconductor

●課題提案者所属機関: OIST

●課題実施機関: Hitachi

●研究内容:

### i. 実験の概要(Abstract)

We are interested in performing holography experiments for electric field mapping in functional CdTe sensor devices. As CdTe is a relatively dense, high-Z material, we considered that high-voltage electron holography would enable us to analyse thicker samples of CdTe.

With this work, we wished to perform first preliminary measurement at 1.2MV to evaluate CdTe electron transparency as a function of thickness, and establish the upper thickness limits for CdTe holography. As we are heavily constrained regarding specimen field of view at OIST, we also wished to understand the extent of field of view that could be achieved with the 1.2MV microscope in Hatoyama.

### ii. 実験内容(Experiments)

We prepared CdTe specimens at OIST, with defined wedge angles, to allow thickness dependence study to be performed.

While minimizing beam exposure to avoid compromising the samples, we performed brief 300kV STEM and EELS data acquisition at OIST, to validate the sample quality and estimate the thickness.

At Hatoyama, Hitachi staff prepared a customized alignment such that we could achieve a wide field of view on the specimen. We acquired electron holograms of the wedge specimen that allow the amplitude and phase signal, as a function of specimen thickness, to be evaluated.

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

Firstly, we prepared suitable specimens by Focused Ion Beam milling (OIST). These results already indicate that a field of view exceeding some microns is possible, and that reasonable phase data can be

obtained, from specimen regions on the order of 1  $\mu\text{m}$  thick.

At present, more careful analysis is ongoing, to carefully compare the data acquired at 300kV and 1.2MV. In particular, we need to carefully set the calibrations of each image, and then definitively plot the holography data as a function of thickness. Dr. Cassidy at OIST also has holography data at 300kV, so it will be very informative to make a side-by-side comparison of 300kV vs. 1.2MV holography for CdTe. This work is ongoing.

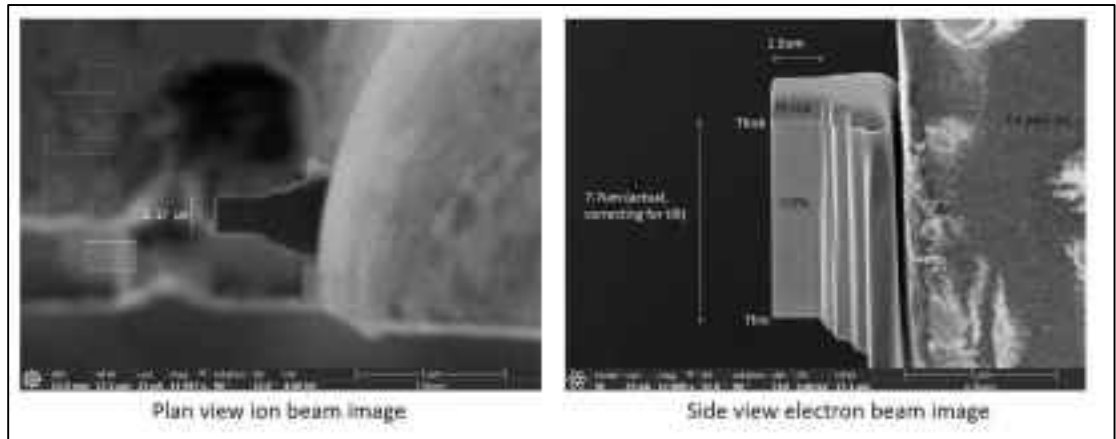


Fig. 20 - Appearance of wedge specimen after sample preparation

We briefly characterized the specimen at OIST at 300kV before shipping to Hatoyama

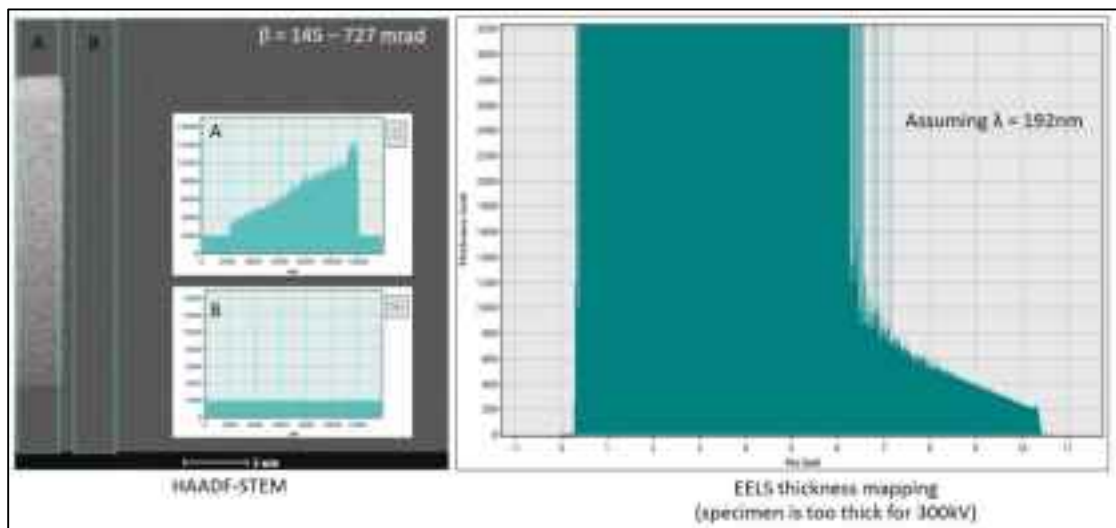


Fig. 21 - Brief characterization at 300kV, of the specimen



thickness and wedge uniformity prior to shipping to Hatoyama. Left: longitudinal line profile of HAADF-STEM image, Right: EELS thickness mapping

It is already evident that the specimen is too thick for 300kV microscopy.

At Hatoyama, electron holograms at 1.2MV, and with wide field of view, were obtained.

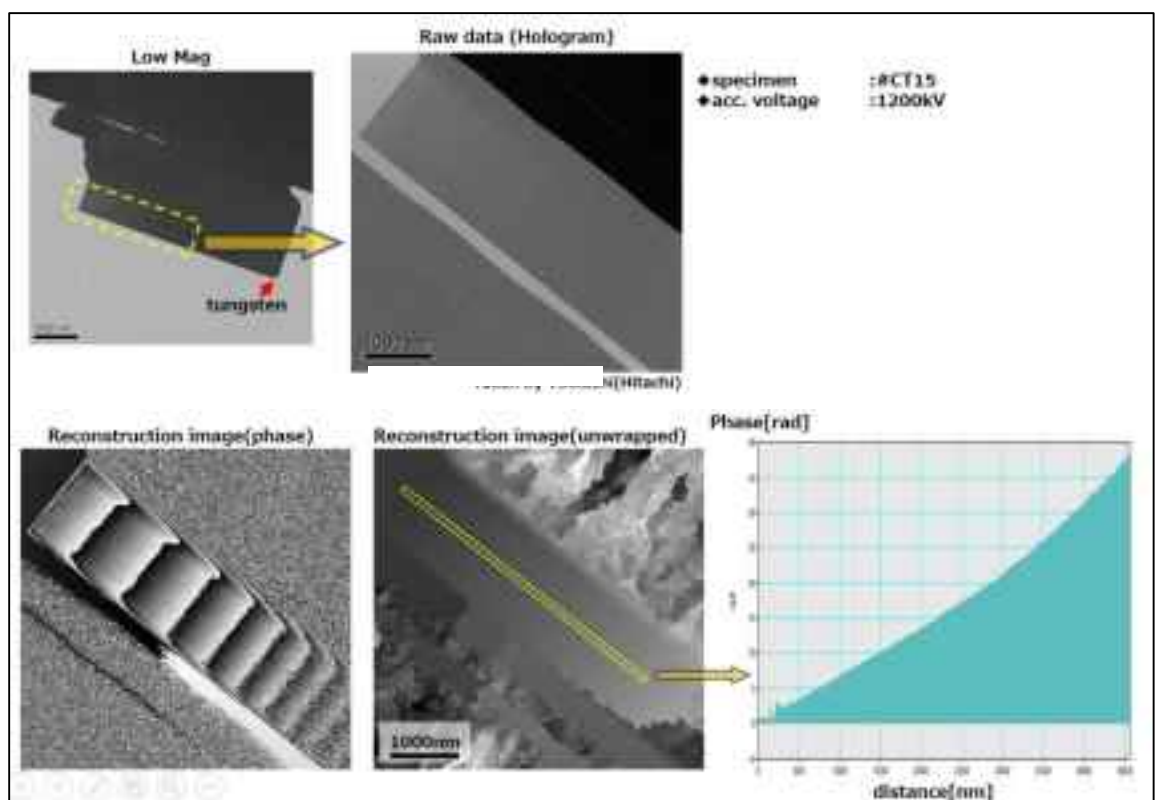


Fig. 2.2 - Representative holography results at 1.2MV, in Hatoyama.

### 課題番号 13 電圧印加時 GaAs p-n 接合試料の不活性層の電位変化の評価

- 課題提案者所属機関: 古河電気工業株式会社
- 課題実施機関: ファインセラミックスセンター
- 研究内容:

#### i. 実験の概要(Abstract)

本研究では、ドーパント濃度  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の GaAs p-n 接合試料の表面不活性層の電圧印加応答を電子線ホログラフィーにより評価することを目的とする。半導体 p-n 接合の電子線ホログラフィー計測において、p-n 間の電位差が過小評価されることがしばしばある。この原因として、試料表面に存在する不活性層(表面空乏層やダメージ層など)のために、位相差を生じる活性層の厚さが試料の見かけの厚さより薄くなっていることが考えられる。この問題の解決方法の一つとして、試料に電圧を印加した状態で電子線ホログラフィーその場計測を行うことが有効である。この方法は、電圧印加により p-n 間の電位差が活性層中でのみ変化し、不活性層中では変化しないことを前提としている。この前提が正しければ、印加電圧に対する p-n 間位相差の変化量を計測することで、p-n 接合の電位分布を正確に求めることが可能である。実際、過去の研究において、この方法によりドーパント濃度  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の GaAs p-n 接合の電位分布を正確に求めることに成功している。しかし、前回の課題において、ドーパント濃度  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の試料の内蔵電位は理論値よりも小さく計測された。この問題の原因として、①上記の前提が間違っており、電圧印加により p-n 間の電位差が不活性層中でも変化すること、あるいは②電子線照射による電子正孔対形成が p-n 間の電位差を小さくすること、等が考えられる。本課題では、不活性層中で p-n 間電位差が変化するかどうかを確かめるため、薄膜のほぼ全域が不活性層となっている試料(薄い試料)に電圧を印加し、電位分布変化を電子線ホログラフィーにより評価する。

#### ii. 実験内容 (Experiments)

収束イオンビームで加工された厚さ 200 nm の GaAs p-n 接合試料(電極/p-GaAs( $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ )/n-GaAs( $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ )/GaAs 基板/電極)にポテンショスタットで逆バイアスに 1 V の電圧を印加し、その電位変化を位相シフト電子線ホログラフィーで計測した。電子線ホログラムはダブルバイプリズム条件で撮影することで、バイプリズムワイヤ端からの Fresnel 干渉縞を回避した。位相再生法は位相シフト法を適用した。

### iii. 結果と考察 (Results and discussion)

電子線ホログラムの撮影および位相シフト法による解析により得られた電圧印加前後の GaAs p-n 接合試料の位相分布を図 2 3 に示す。図 2 3 (a) はゼロバイアス時の位相像である。図 2 3 (a) より、p-n 接合界面で位相が変化しており、n-GaAs の方が p-GaAs よりも位相が高くなっていることがわかる。図 1(b) は逆バイアスに 1 V の電圧を印加した時の位相像である。図 2 3 (a), (b) より、電圧印加前後で位相分布はほとんど変化していないことがわかる。より定量的な解析のため、これらの位相像から得られた位相プロファイルを図 2 3 (c) に示す。図 2 3 (c) より、ゼロバイアス時と逆バイアス時の p-n 間位相差は、それぞれ 0.06、0.08 rad と計測され、その差は 0.02 rad と非常に小さい。本実験の計測誤差は 0.02 rad 程度であり、電圧印加前後で p-n 間の位相差はほとんど変化していないといえる。以上、薄膜のほぼ全域が不活性層となっている試料（薄い試料）では、電圧印加による p-n 間の電位差の大きな変化は観測されなかった。

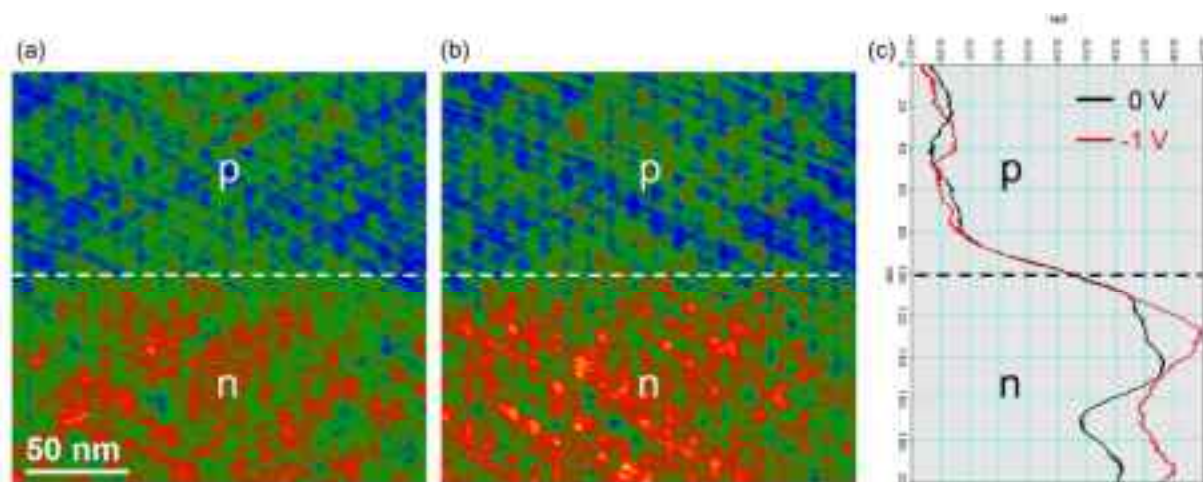


図 2 3 電圧印加に伴う GaAs p-n 接合試料の位相分布(電位分布に相当)の変化。  
(a) 位相像(ゼロバイアス)、(b) 位相像(逆バイアス 1 V)、(c) 電圧印加前後の位相プロファイル。

### iv. まとめ(Conclusion)

薄膜のほぼ全域が不活性層となっている GaAs p-n 接合試料を用いて、電圧印加に伴う p-n 間位相差の変化を位相シフト電子線ホログラフィーにより評価した。実験の結果、ゼロバイアス時と逆バイアス(1 V)時の p-n 間位相差がそれぞれ 0.06、0.08 rad と計測され、電圧印加による変化量は 0.02 rad と非常に小さかった。この変化量は誤差程度であり、電圧印加により p-n 間電位差はほとんど変化しなかったといえる。本実験の結果は、電圧印加による p-n 間の電位差の変化は、不活性層中では起こらないことを示唆している。したがって、ドーパント濃度が低い試料において内蔵電位の計

測値が過小評価される問題は、電子線照射による電子正孔対形成が原因である可能性が高いと結論できる。ドーパント濃度が高い  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の試料でこの問題が起きなかったのは、試料中にキャリアが多く存在するため、電子正孔対形成の影響をほとんど受けなかったことが理由として考えられる。

## 課題番号 14 ヘテロ界面に形成される 2 次元電子ガス (2DEG) の観察

- 課題提案者所属機関：住友電気工業株式会社
- 課題実施機関：ファインセラミックスセンター
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

GaN 系半導体は、高性能な光デバイスやパワーデバイスの材料として期待されている。GaN を用いた HEMT デバイスの開発において、ヘテロ界面に形成された 2 次元電子ガス層の様子を直接評価することは重要である。今回、GaN/AlGaIn ヘテロ界面に形成される 2 次元電子ガス層を、電子線ホログラフィーで評価した。

### ii. 実験内容(Experiments)

今回、実験に用いた試料構造の模式図を図 2 4 に示す。構造は、i-GaN 上に i-AlGaIn 層 (Al 組成：28%) /n-AlGaIn 層 (Al 組成：28%) /n-GaN を成長させた試料である。試料の表面処理有り・無しの 2 種類を観察した。TEM 試料は、室温 FIB でマイクロサンプリングを行い、クライオ FIB で膜厚：200~250 nm になるように薄膜加工を実施したものである。観察は、300 kV-TEM (HF-3300EH) でホログラムを撮影し、位相シフト法で電子波の位相変化を再生した。



図 2 4 試料構造の模式図

### iii. 結果と考察 (Results and discussion)

図 2 5 にそれぞれの TEM 像、ホログラム、位相像を示す。表面処理有り・無しの両試料で、TEM 像、ホログラム、位相像に有意な差は確認できなかった。それぞれの TEM 試料の膜厚を SEM で計測した結果、表面処理有りの試料が 235 nm で、表面処理無しの試料が 219 nm であった。位相像のラインプロファイル結果を図 2 6 に示す。それぞれのピークトップを比較した結果、表面処理有りの試料は 0.51 rad で、表面処理無しの試料は 0.46 rad であり、表面処理有りの試料のほうが、0.05 rad 位相変化が大きいことが確認できた。しかし、試料膜厚の異なる領域も含まれるため、有意な違いと判断するには厚さ分布や内部電位を求めるための踏み込んだ実験が必要と考えている。

### iv. まとめ(Conclusion)

表面処理有無の i-GaN/i-AlGaIn/n-AlGaIn/n-GaN 試料について電子線ホログラフィー計測を行った結果、どちらも 2 次元電子ガス層由来と考えられ

る位相変化を観察した。i-GaN/i-AlGaN の界面に形成される 2 次元電子ガス層のピーク値は、表面処理無しの試料は 0.46 rad、表面処理有りでは 0.51 rad となったが、有意な差と判断するには膜厚や内部電位の差を明らかにする必要がある。

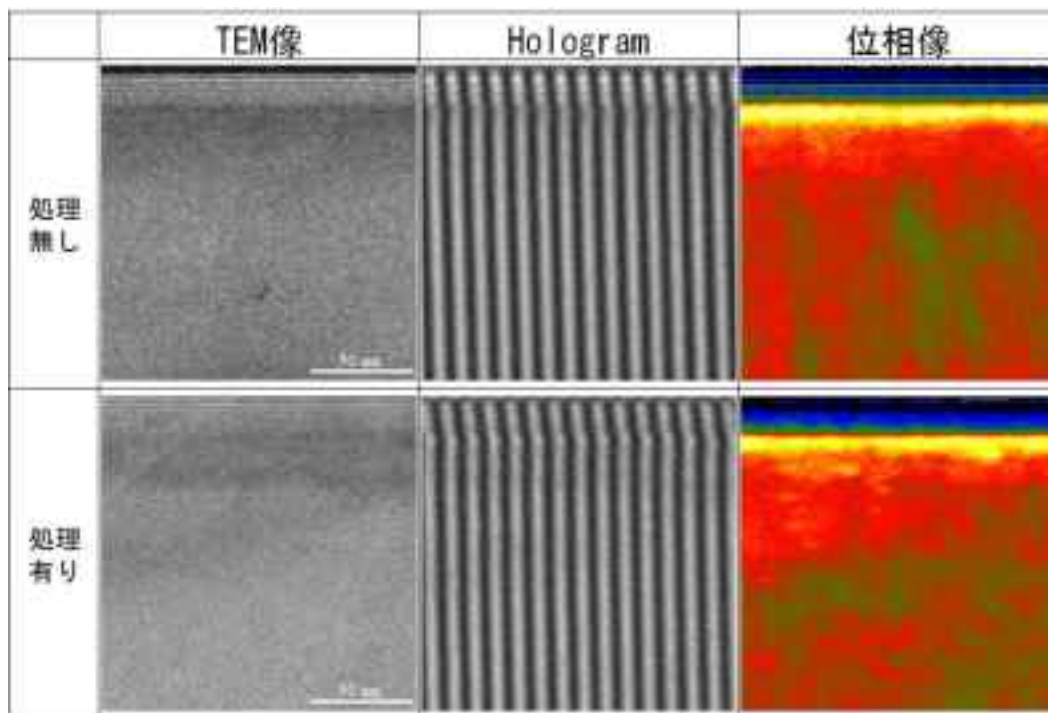


図 25 TEM 像、ホログラム、位相像

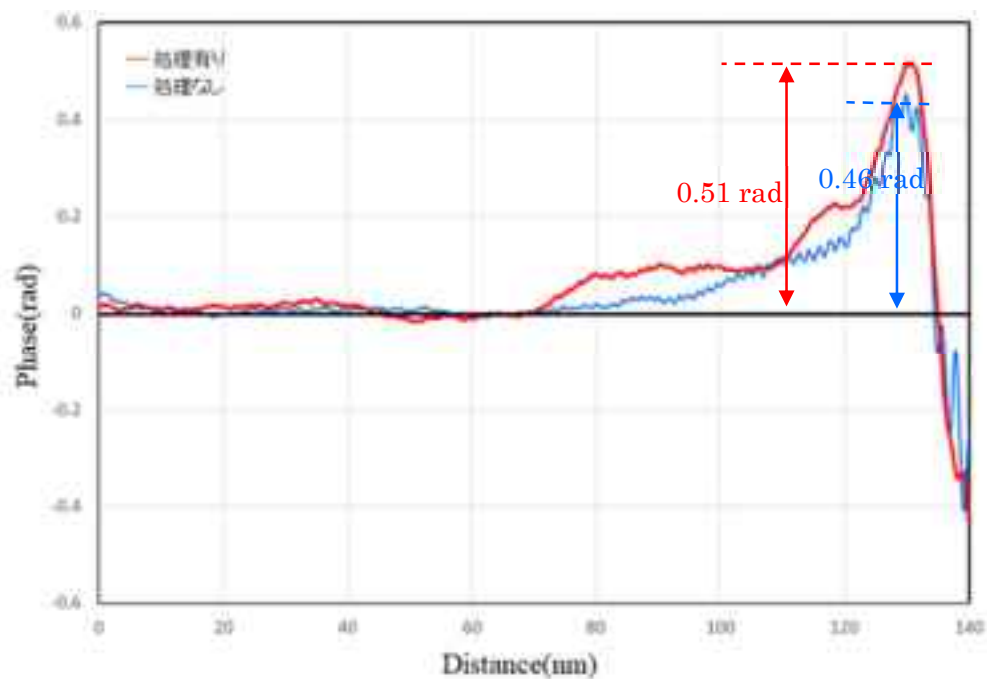


図 2 6 表面処理有り/無しのラインプロファイル

## 課題番号 15 電子線ホログラフィーと探針ホルダを活用した材料の電気特性評価

- 課題提案者所属機関：理研・CEMS
- 課題実施機関：東北大学
- 研究内容：

### i. 研究の概要(Abstract)

電子顕微鏡中で微細領域の物性を測定することは、材料開発の指針を得る有力な手段となっている。電子線ホログラフィーによる磁性材料の磁束密度測定はよく知られた成功例である<sup>[1,2]</sup>。伝導性の評価のためには、試料の特定の箇所を選んで電流を流すための探針（プローブ）が用いられてきた<sup>[3]</sup>。探針から流れる電流と、電子線ホログラフィーによって得られる局所のポテンシャル情報を組み合わせることは、試料中の伝導度分布に関する知見をもたらす強力な手法と期待される。いっぽうで、探針を任意の場所に接触させるための可動機構を有する試料ホルダには、大気中から電子顕微鏡の真空中に導入する際に内外の差圧によって、探針に意図せぬ移動・ずれを生じかねない問題があった。東北大が所有し、アトミックスケール電磁場解析プラットフォームを通じて提供する JEM3000F 透過電子顕微鏡と各種の探針付き試料ホルダは、この分野で豊富な実績を有していることから、探針利用 TEM 解析技術の検討用に最適な設備のひとつと考えられる。

### ii. 実験内容(Experiments)

解析の対象には、電子顕微鏡観察時の帯電防止用材料として提供されているイオン液体 IL1000（日立ハイテクノロジーズ）を用いた。イオン液体は蒸気圧が低く、真空中、常温で液体状態を保ち伝導性を示す。いっぽうで、長時間の電子照射を受けると、次第に固化するとともに、伝導性の低下を示唆する帯電が電子線ホログラフィーから報告されている<sup>[4]</sup>。周波数範囲を広げた伝導測定によって試料液体中のイオン運動に関する知見が得られることを期待し、交流（AC）インピーダンス測定法を用いた。また、ポテンシャル観測として、試料周辺の電子線ホログラフィーを行った。

### iii. 実験結果と考察 (Results and discussion)

伝導性を測定する試料として、金属探針（電極）間をブリッジ状に結んだイオン液体を用いた。図 2 7 に、探針間に形成されたイオン液体ブリッジの一例を示した。あらかじめ FIB で細く加工した探針を用いることによって、直径 8 μm のブリッジを作ることができた。一連の測定中に電子照射を受けたブリッジは測定後には固化が進んでおり、探針間隔を広げると



図 2 7 (c) のように破断した。

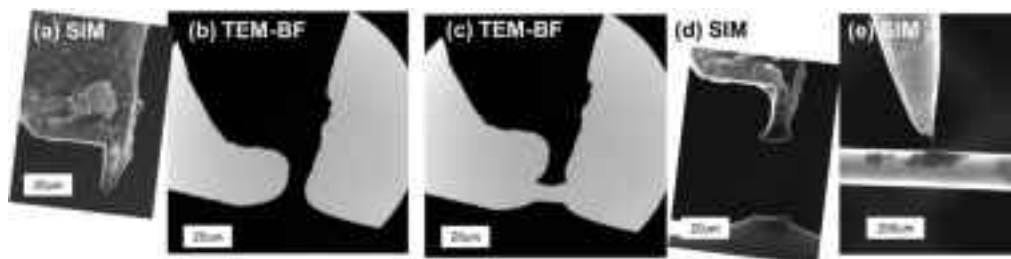


図 2 7 イオン液体ブリッジ

(a) FIB 加工した Pt-Ir 探針の先端、 (b)イオン液体ブリッジ、 (c), (d), (e)切れたイオン液体ブリッジ.

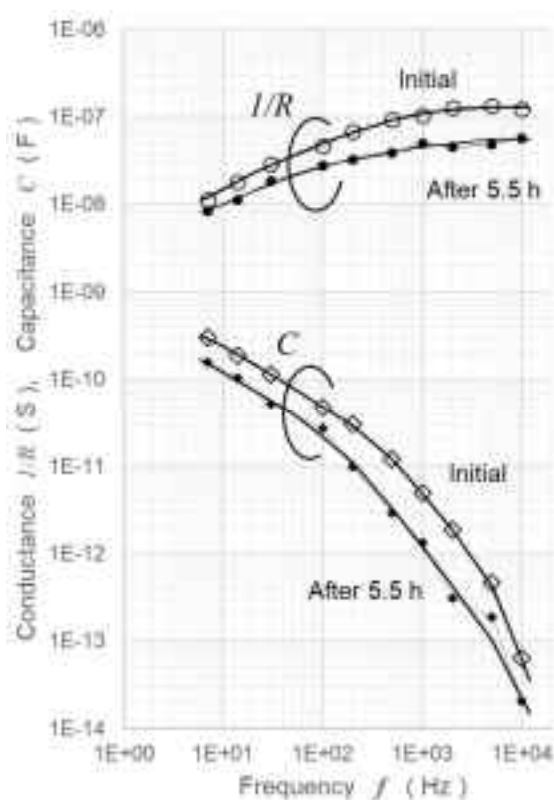


図 2 8 ブリッジ試料破断面(図 2 7 (c))付近の液体ブリッジのコンダクタンスとキャパシタンス.

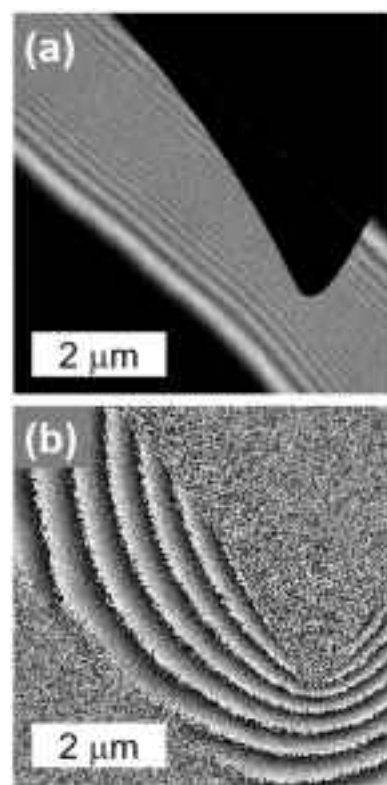


図 2 9 TEM 中で電子照射を受けたイオン液体ホログラム (a) と 位相再生像 (b) .

ブリッジ形成後初期に測定した交流インピーダンスと、5.5時間の電子照射を経た後の測定結果を図 2 8 に対照して示した。測定結果を、試料のコンダクタンス ( $1/R$  (S)) とキャパシタンス ( $C$  (F)) に換算して示している。  $1/R$  も  $C$  も、時間の経過とともに減少しているが、コンダクタン



スの低下は高域側で顕著であることがわかった。また、破断したブリッジ端部について電子線ホログラフィーを行った結果、図 2 9 のように帯電を示唆する位相再生像が得られた。

今回利用した探針付き試料ホルダでは、期待通り真空導入時の探針のずれが小さく抑えられ、安定した実験ができた。ホログラフィーによる詳細な電磁場解析は今後の課題として残っている。

### 参考文献

- [1] K. Niitsu, A. Sato, T.T. Sasaki, R. Sawada, Y. Cho, Y. Takada, T. Sato, Y. Kaneko, A. Kato, T. Ohkubo, D. Shindo, K. Hono, Y. Murakami, “Magnetization measurements for grain boundary phases in Ga-doped Nd-Fe-B sintered magnet” *J. Alloys Compd.* **752** (2018) 220–230.
- [2] Zentaro Akase, Hiroto Kasai, Shuichi Mamishin, Daisuke Shindo Mitsuru Morita, Akira Tonomura, “Imaging of magnetic flux distribution in vicinity of insulating particles in high-T-c superconductor by electron holography” *J. Appl. Phys.*, **111**(3), 033912-1-033912-5 (2012. 2).
- [3] Y. Murakami, N. Kawamoto, D. Shindo, I. Ishikawa, S. Deguchi, K. Yamazaki, M. Inoue, Y. Kondo and K. Suganuma “Simultaneous Measurements of Conductivity and Magnetism by Using Microprobes and Electron Holography” *Appl. Phys. Lett.*, **88** (2006) 223103(1)–223103(3).
- [4] Manabu Shirai, Toshiaki Tanigaki, Shinji Aizawa, Hyun Soon Park, Tsuyoshi Matsuda, Daisuke Shindo, “In situ electron holographic study of Ionic liquid” , *Ultramicroscopy*, **146**, 125–129 (2014. 11).

## 課題番号 16 一つの電子計測器と二人の観測者による電子計測実験

●課題提案者所属機関：名城大学

●課題実施機関：日立製作所

●研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

提案者らは高輝度で高い干渉性を持った電界放出電子銃を用いて、光子の(量子)干渉実験と同様の実験を電子で行ってきた。本研究では、電子検出器としてデジタルイメージングカメラのカウンティングモードを用いた場合の電子波の波動関数の示す確率での電子の観測過程について、有名な『Schrödinger の猫』のパラドックスを模した実験を行う。

### ii. 実験内容(Experiments)

図30に示すように、ホログラフィー電子顕微鏡を用いて、電子線バイプリズムなしで回折・干渉しない電子を、GATAN社の単電子検出撮像装置及び撮像制御ソフト(Digital Micrograph)を用いたカウンティングモードにて記録する。

モニターには電子の到着に応じた画像が出力される。この画像の任意の2ピクセルをトリミング

し、観測者は電子が観測されたか否かを判断する。電子が到着したと判断(黒→白に反転)した方の手を挙げ、その様子とモニターを録画し、2人の観測者の判断を比較する。

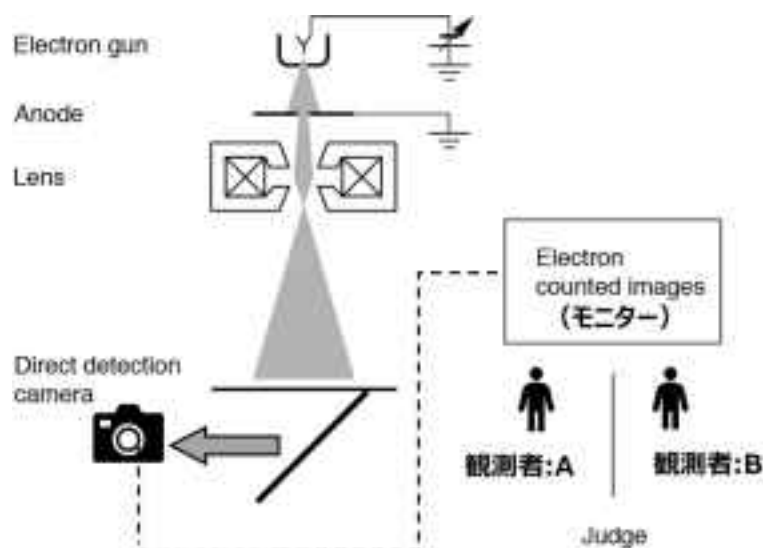


図 30 実験配置図

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

実験結果を表3に示した。イベントのサンプル数は合計で 107 である。表中に L,R は左右いずれかのピクセルに電子が到達したと判断し、観測者が挙手したことを示している。B\*は L, R 双方が黒→白に反転し、それを受けて観測者が左右両方を挙手したことを示す。2人の観測者の判断は全て同じになった。この結果に関しては、以下のように考えている。

図 3 1 に示すような電子の観測過程では、電子がある特定の位置で観測されるのは、観測者の意識による判断ではない。この場合は、GATAN の Digital Micrograph によるカウンティングモードで電子として記録された時点であり、波動関数が電磁波のように時間発展するとすれば、波束が瞬時に収縮するのは、この時点であると考えられる。二重スリットやパイプリズムを用いた干渉がある場合どうなるかについては、今後検討する。



図 3 1 本実験における観測過程

表 3 実験結果

| バ<br>ウ<br>ン | モ<br>ー<br>タ<br>ー | A |  | B | バ<br>ウ<br>ン | モ<br>ー<br>タ<br>ー | A | B | バ<br>ウ<br>ン | モ<br>ー<br>タ<br>ー | A | B | バ<br>ウ<br>ン | モ<br>ー<br>タ<br>ー | A | B |
|-------------|------------------|---|--|---|-------------|------------------|---|---|-------------|------------------|---|---|-------------|------------------|---|---|
| 1           | R                | R |  | R | 31          | L                | L | L | 61          | R                | R | R | 91          | L                | L | L |
| 2           | L                | L |  | L | 32          | R                | R | R | 62          | R                | R | R | 92          | L                | L | L |
| 3           | R                | R |  | R | 33          | R                | R | R | 63          | L                | L | L | 93          | L                | L | L |
| 4           | L                | L |  | L | 34          | L                | L | L | 64          | R                | R | R | 94          | L                | L | L |
| 5           | R                | R |  | R | 35          | L                | L | L | 65          | L                | L | L | 95          | R                | R | R |
| 6           | R                | R |  | R | 36          | L                | L | L | 66          | B*               | B | B | 96          | L                | L | L |
| 7           | L                | L |  | L | 37          | B*               | B | B | 67          | R                | R | R | 97          | R                | R | R |
| 8           | R                | R |  | R | 38          | L                | L | L | 68          | R                | R | R | 98          | R                | R | R |
| 9           | R                | R |  | R | 39          | L                | L | L | 69          | L                | L | L | 99          | R                | R | R |
| 10          | R                | R |  | R | 40          | R                | R | R | 70          | L                | L | L | 100         | R                | R | R |
| 11          | L                | L |  | L | 41          | L                | L | L | 71          | L                | L | L | 101         | L                | L | L |
| 12          | L                | L |  | L | 42          | L                | L | L | 72          | L                | L | L | 102         | R                | R | R |
| 13          | R                | R |  | R | 43          | R                | R | R | 73          | R                | R | R | 103         | R                | R | R |
| 14          | L                | L |  | L | 44          | L                | L | L | 74          | R                | R | R | 104         | L                | L | L |
| 15          | L                | L |  | L | 45          | R                | R | R | 75          | L                | L | L | 105         | R                | R | R |
| 16          | R                | R |  | R | 46          | L                | L | L | 76          | R                | R | R | 106         | R                | R | R |
| 17          | L                | L |  | L | 47          | L                | L | L | 77          | R                | R | R | 107         | L                | L | L |
| 18          | L                | L |  | L | 48          | L                | L | L | 78          | L                | L | L |             |                  |   |   |
| 19          | R                | R |  | R | 49          | R                | R | R | 79          | L                | L | L |             |                  |   |   |
| 20          | R                | R |  | R | 50          | L                | L | L | 80          | L                | L | L |             |                  |   |   |
| 21          | L                | L |  | L | 51          | B*               | B | B | 81          | R                | R | R |             |                  |   |   |
| 22          | L                | L |  | L | 52          | R                | R | R | 82          | R                | R | R |             |                  |   |   |
| 23          | L                | L |  | L | 53          | L                | L | L | 83          | L                | L | L |             |                  |   |   |

|           |          |          |  |          |           |          |          |          |           |          |          |          |  |  |  |  |
|-----------|----------|----------|--|----------|-----------|----------|----------|----------|-----------|----------|----------|----------|--|--|--|--|
| <b>24</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  | <b>L</b> | <b>54</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>84</b> | <b>L</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  |  |  |  |
| <b>25</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  | <b>L</b> | <b>55</b> | <b>L</b> | <b>L</b> | <b>L</b> | <b>85</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  |  |  |  |
| <b>26</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  | <b>R</b> | <b>56</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>86</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  |  |  |  |
| <b>27</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  | <b>L</b> | <b>57</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>87</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  |  |  |  |
| <b>28</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  | <b>L</b> | <b>58</b> | <b>L</b> | <b>L</b> | <b>L</b> | <b>88</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  |  |  |  |
| <b>29</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  | <b>L</b> | <b>59</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>89</b> | <b>L</b> | <b>L</b> | <b>L</b> |  |  |  |  |
| <b>30</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  | <b>R</b> | <b>60</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>90</b> | <b>R</b> | <b>R</b> | <b>R</b> |  |  |  |  |

B\* : R, L 双方が “ON”

## 課題番号 17 電子線ホログラフィーを用いたアモルファス磁性合金の結晶化過程と磁気特性の評価

- 課題提案者所属機関：大阪府立大学
- 課題実施機関：九州大学
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

発電や自動車の駆動源等で利用されているモーターには、多くの軟磁性材料が利用されている。軟磁性材料の主力製品は現在電磁鋼板であるが、その鉄損を少しでも低減できれば、市場で利用される膨大な量のモーターに対して省エネルギーを実現させることができる。本研究では、新たな軟磁性材料を念頭に開発された Fe-Si-B 系、すなわちアモルファスからナノ結晶を析出させるタイプの軟磁性材料の磁区構造を電子線ホログラフィーで調べ、材料機能の向上に資する情報の獲得を試みた。

### ii. 実験内容 (Experiments)

実験に利用した試料は  $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$  という組成をもつ合金である。以下、この試料を  $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$  合金と称する。液体急冷法で作製した  $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$  合金はアモルファス状態であるが、これに熱処理を施すと結晶化が進行する。図 3 2 の示唆熱分析の結果が示す通り、この試料では 774 K ( $T_{c1}$ ) と 804 K ( $T_{c2}$ ) に結晶化に関わる発熱ピークが観測される。この結果をもとに、本研究では試料に 873 K の熱処理を施し、アモルファス相→結晶相の相変態を誘発した。電子顕微鏡観察の試料を調製するため、集束イオンビームを用いて  $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$  合金を薄片化した。試料片の厚さは 100 nm 程度に設定した。電子線ホログラフィーのデータ収集は、九州大学の 300 kV ホログラフィー電顕（日立 HF3300X）を用いて行った。

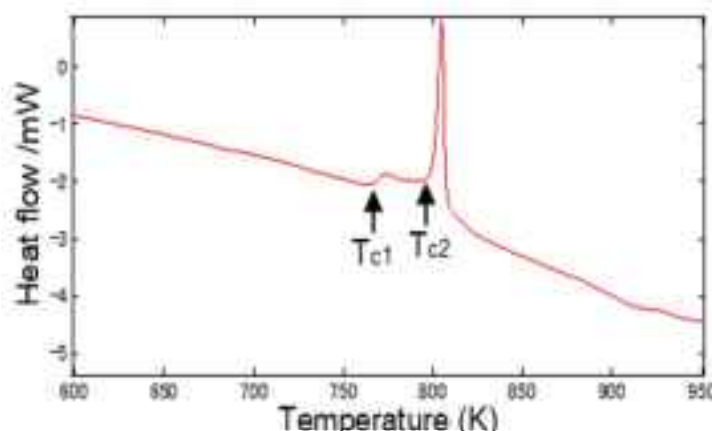


図 3 2  $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$  合金に対する示唆熱分析の結果  
(大阪府立大学・大迫明弘氏の卒業論文概要から、著者の了解を得て転載)

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

図 3 3 (a)に、薄片化を施した $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$ 合金の透過電子顕微鏡像 (TEM 像) を示す。上述した熱処理を施した結果、試料の全域にわたって粒径 200 nm 程度の微結晶が析出している。大迫等の X 線解析の実験結果によれば、熱処理で生成した結晶相は a-Fe 相、 $\text{Fe}_3\text{Si}$  相、 $\text{Fe}_2\text{B}$  相のいずれかである (大阪府立大学・卒業論文)。一方、図 3 3 (a) では回折コントラストを殆ど示さない結晶粒が一部観察され、ごくわずかな残留アモルファス相の存在を考慮する必要性も示唆される。

図 3 3 (b) は、(a) の枠線部分から取得した電子線ホログラムである。図 3 3 (c) には、(b) を位相再生した結果を示す。集束イオンビームで成形した試料の膜厚変化はなだらかであることを考慮すると、図 3 3 (c) で観察された位相情報は主として $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$ 合金の磁性に由来するものであり、この場合の等高線は試料面内の磁束線の分布を概ね表すものと、みなすことができる。図 3 3 (c) の結果を参照する限り、873 K で熱処理を施した $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$ 合金の内部には閉じた磁区構造、即ち還流磁区が発達しており、試料外へ漏れ出す磁場 (漏洩磁場) はほぼ無視できる状態にある。磁区構造に関するこれらの特徴は、熱処理で微結晶を析出させた試料も、基本的に軟磁性材料としての特徴を備えていることを示唆している。図 3 3 (c) を詳しく観測すると、還流磁区は結晶学的な微細構造を反映した形態を示しながらも、磁区と微結晶に厳密な一対一の対応関係がある訳ではない。即ち、鉄の濃度が異なる三つの結晶相、言い換えれば飽和磁束密度が異なる結晶相が複雑に入り組んだ状況では、不必要な磁区の細分化を避けるために、複数の結晶粒に跨がったやや大きめの磁区が形成されることが考えられる。また、a-Fe 相と  $\text{Fe}_3\text{Si}$  相は立方晶であるのに対して、 $\text{Fe}_2\text{B}$  相は正方晶であるため、これらの結晶相では磁気異方性が異なる。今の場合、粒径が 200 nm 程度と大きいため、互いの磁気異方性を相殺するランダム異方性の条件は実現されていない。このように、局所的な磁気異方性の違いを反映して、試料内での磁束線の分布 (磁化の分布をある程度トレースしたもの) は湾曲を伴う複雑なパターンとなっている。

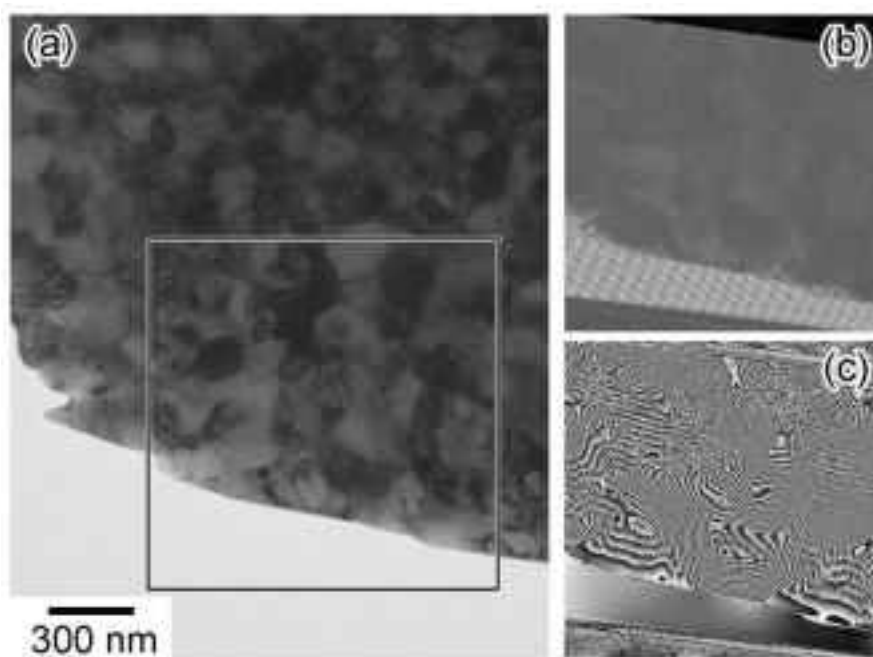


図 3 3  $(\text{Fe}_{76}\text{Si}_9\text{B}_{10}\text{P}_5)_{99.5}\text{Cu}_{0.5}$  合金の (a)透過電子顕微鏡像、(b) (a)の枠線部分から取得した電子線ホログラム、(c) (b)を再生して得た位相像.

## 課題番号 18 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>サブミクロン中空粒子の磁化状態観察

●課題提案者所属機関：岩手大学

●課題実施機関：東北大学

●研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

400～700nm 径のマグネタイト (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) 固体粒では T=10K～300K での低磁場 (300～-5000e) で spin vortex 構造の形成が示唆されている。またシミュレーションでは試料形状を中空粒子とした場合は、固体粒子で予想される vortex 軸が印加磁場方向を向いた構造に加えていくつかの不均一状態の発現も予想されていることから中空マグネタイト試料を用いた電顕による磁化状態の観察を試みた。その結果磁場情報の抽出には至らなかったが、試料や観察条件の課題が明らかとなった。

### ii. 実験内容(Experiments)

マグネタイトナノ粒子は、高い飽和磁束密度を持つことから近年医療分野で注目されている材料で、特に中空マグネタイトナノ粒子は薬剤を内部に含有させる可能性があるためにドラッグデリバリーシステム技術への応用が期待されている。今回、粒径約 400nm の中空マグネタイト粒子を TEM 観察用マイクログリッドに分散し、電子線ホログラフィー観察を試みた。撮影には東北大学多元研の加速電圧 300 kV の JEM3000F(日本電子(株))に昇温ホルダを用いて室温と 600℃で観察した。

### iii. 観察結果(Experimental results)

図 34 a, b に今回撮影された室温における中空マグネタイト粒子のホログラムと位相再生像の例を示す。ノイズを低減させるために 10 枚のホログラムを、ドリフトを考慮して平均化したものを用いた。位相再生像では粒子の縁に沿って同心円状の位相変化の等高線が見られる。これは主に試料の厚さ変化に対応した内部ポテンシャルによるものである。この後、内部ポテンシャルによる位相変化分を差し引いて磁束分布の情報を抽出するために、試料を、キュリー点を超える 600℃に加熱してホログラムを撮影し、位相再生像の引き算を試みた。しかし、今回は試料が厚すぎて干渉縞が途切れた個所が多数あり、位相を unwrap する処理で位相が繋がらないエラーが多く箇所が生じたため、残念ながら磁場情報の抽出には至らなかった。解析を成功させるには、より小さな試料の観察を行うか、もしくは、輝度/透過能の高いホログラフィーTEMによる解析が必要である。



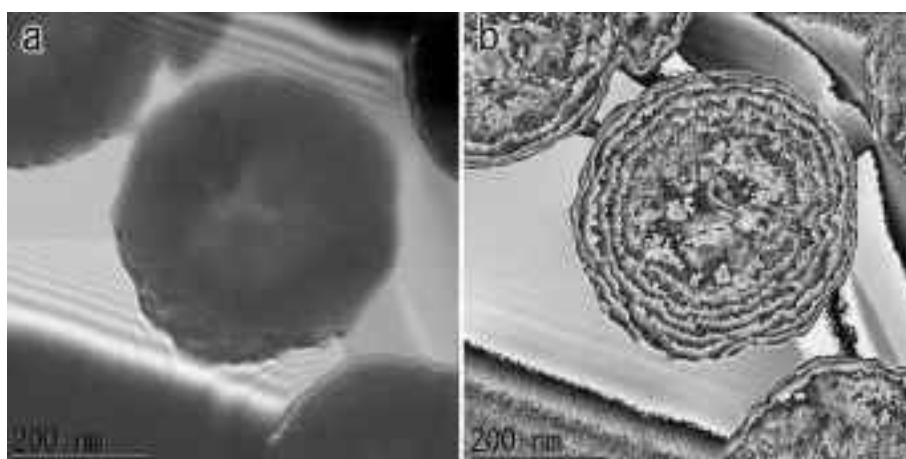


図 3 4 中空マグネタイト粒子から得られた(a)電子線ホログラムと(b)位相再生像.

## 課題番号 19 半導体多層膜の電位分布観察 (2)

- 課題提案者所属機関：非公開
- 課題実施機関：ファインセラミックスセンター
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

本課題では、有機半導体膜内部の電位分布を、高感度計測が可能な位相シフト電子線ホログラフィーを用いて観察し、膜内部および界面近傍のバンド変化を実験的に明らかにすることを目的とする。

今回の試料は、Si 基板上に成膜された ITO(Indium Tin Oxide)／有機半導体 2 層／ITO／Al 構造を持つ試料であり、有機層の一部分が前回と異なる。また、有機層の平均内部電位も計測したいため、くさび状に FIB 加工された TEM 試料を用いた。FIB (室温) の加速電圧 2kV と 5kV で仕上げた 2 種類の TEM 試料について、電子線ホログラフィーで計測し比較した。

その結果、有機層の界面において、バンドの曲がり観察された。また、各有機層内部で電位の傾斜が観察され、電場の値を計測することができた。

### ii. 実験内容(Experiments)

FIB を用いて作製されたくさび状の TEM 試料 (くさび角：約 42 度) について、位相シフト電子線ホログラフィーで観察した。電位分布計測の精度を向上させるため、2 本のバイプリズムを用いたダブルバイプリズム条件で TEM のレンズを調整し、50 枚のホログラム (電子波干渉パターン) を撮影し、その後、位相シフト法で位相像を再生した。

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

図 35 (a) に 2kV で最終仕上げしたくさび状試料の TEM 像を示す。有機層 A と B の界面が観察されている。この観察領域全体でホログラムを撮影し、再生した位相像を図 35 (b) に示す。空間分解能は 1.8 nm である。試料の厚さが変化しているため、位相の等高線が観察されている。この位相の傾斜から、各層の平均内部電位を計測した結果、有機層 A は 6.10 V、有機層 B は 6.36 V と計測された。有機層 A と B の TEM 像の強度分布、位相分布、電位分布を図 36 (a) ～ (c) に示す。位相分布および電位分布において、界面で急峻な変化が観察されるが、これは各層の平均内部電位が異なることによる差である。有機層 B において、界面近傍で位相および電位が低下していることがわかる。これは、界面近傍で有機層 B 内部のバンドが曲がっていることによるものと考えられる。その電位差は  $0.093 \pm 0.015$  V、幅

は  $14.81 \pm 1.6$  nm と計測された。バンドの曲がり方向から、おそらく界面ではホールが溜まっていると考えられる。また、有機層 A と B 内の電場も計測し、それぞれ、 $-1.87$  MV/m、 $0.33$  MV/m と計測できた。各試料の厚さ（100 nm～700 nm、50 nm ステップ）で、曲がったバンドの変化を計測し、そのグラフから inactive layer の厚さを見積もった結果、80～150 nm であることがわかった。信頼性のある電位分布を計測するためには、少なくとも 400 nm 以上の TEM 試料厚が必要であることもわかった。5kV で仕上げた TEM 試料では、inactive layer の厚さが若干厚いことがわかった。

#### iv. まとめ(Conclusion)

有機層 A と B が接合することによるバンドの曲がりや各層の電場の値を定量的に観察することに成功した。この電位分布から、バンドの構造がわかり、高性能な有機デバイスの設計などに役立つものと期待できる。

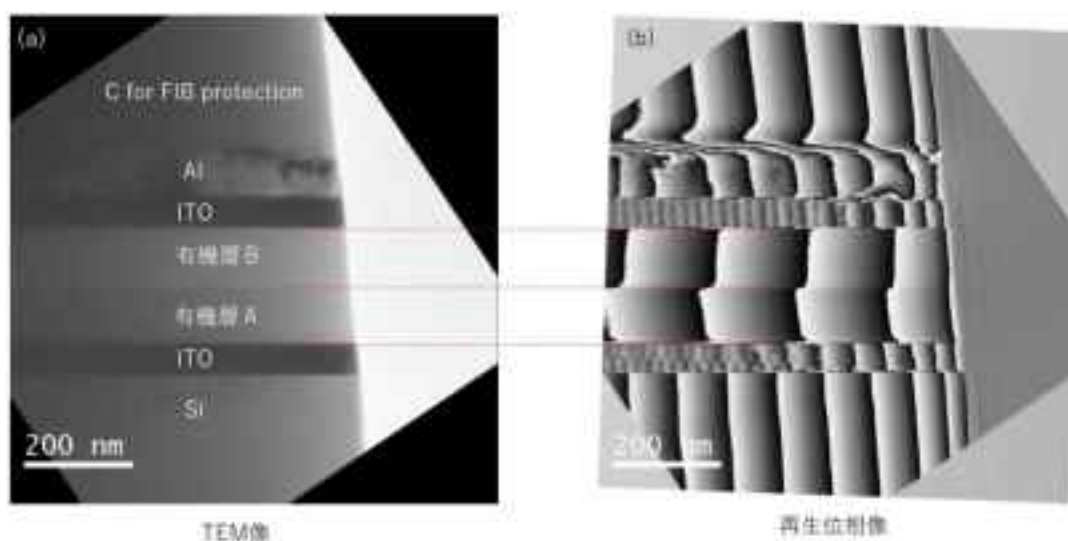


図 3-5 FIB(2 kV)で作製したくさび状TEM試料のTEM像と再生位相像

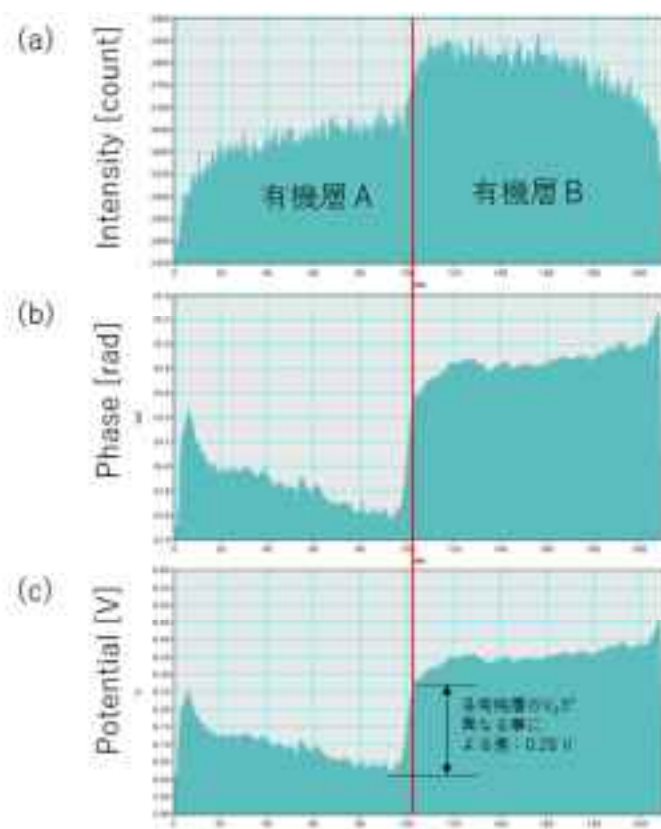


図 3-6 試料厚 600 nm での (a) TEM 像の強度分布, (b) 位相分布, (c) 電位分布

**課題番号 20 Study of Radiation Damage from High-Energy Electrons  
on Organic Molecules**

- 課題提案者所属機関: Paul Scherrer Institute, Switzerland
- 課題実施機関: Hitachi
- 研究内容:

**i. 実験の概要(Abstract)**

Measurements of electron diffraction patterns of organic samples are often limited by radiation damage, as the energetic electrons ionize or displace the atoms in the sample. We wish to investigate the applicability of higher energy electrons in the MeV range. To achieve these goals, we propose recording diffraction patterns of a crystalline sample of small organic molecules at various electron doses. Unfortunately, the sample was too big and could not perform diffraction experiments.

**ii. 実験内容(Experiments)**

These crystals show strong Bragg diffraction, which allows accurate determination of the unit cell parameters and maximal accessible resolution. Randomly oriented crystals in combination with a low-dose, wide electron beam, will allow straightforward recording of Debye-Scherrer rings without the need of tilt alignment. For the proposed studies, we have chosen the drug carbamazepine (because it has a similar composition as biological molecules, is stable at room temperature, and is available as well-ordered crystals of high purity). Radiation damage effects are anticipated to already be observable at a cumulative electron dose as low as  $1 \text{ e}^-/\text{\AA}^2$ . We have applied carbamazepine crystals to a carbon film on standard 3 mm TEM grids, ready for measurement.

We plan to evaluate the contrast of the diffraction ring-patterns as a function of electron dose, which will allow assessing the dose-dependent radiation damage by monitoring loss of intensity of the high-resolution diffraction rings as a function of exposure time. The experiment with MeV electrons will be supported with measurements at lower accelerating voltages, performed on 100–300 keV electron microscopes available at the University of Basel and the Paul Scherrer Institute in Switzerland. We will supply a

detailed experimental protocol of these measurements.

In order to quantitatively assess the electron dose on the sample we would need to know the quantum efficiency of the MeV microscope detector, a possibly non-linear function that relates the count rate per pixel to the electron dose per pixel. If Hitachi does not have it, we could reconstruct it from a series of additional calibration experiments on a non-organic sample (Aluminum, for example), which is less prone to radiation damage than an organic sample. In these experiments, diffraction with low count rates at low-resolution ring should be measured, along with the total current that arrives at the detector. Then the intensity of the ring is measured with a twice as long exposure time, then 4 times as long, etc. From these diffraction ring-patterns resulting from short and long exposures we will be able to recover the linearity of the response of the detector.

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

Prepared specimen for electron diffraction observation was unsuitable for experiments due to multiple particles overlapping and thick components.

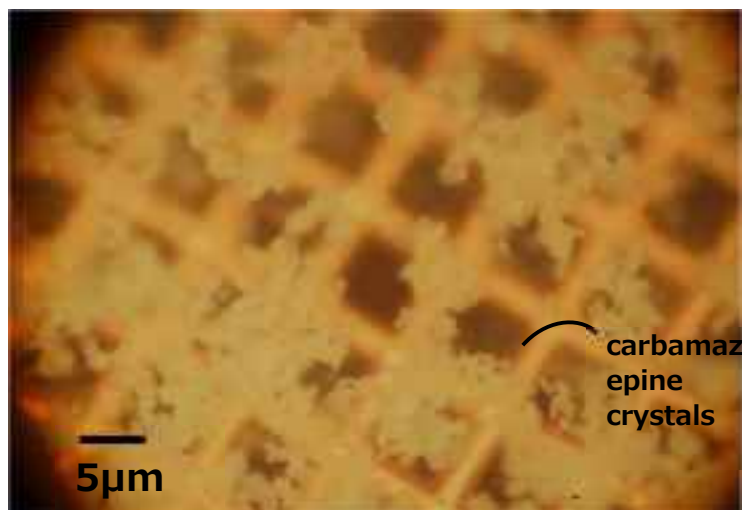


Figure 37 Optical microscopic image of the sample.

## 課題番号 2 1 p型GaN半導体における電位分布観察

- 課題提案者所属機関：産業技術総合研究所
- 課題実施機関：ファインセラミックスセンター
- 研究内容：

### i. 実験の概要(Abstract)

Mg を打ち込んで作製した p-GaN 断面試料の不純物拡散により形成された 2 次元電位分布を、電子線ホログラフィーにより観察する。

### ii. 実験内容(Experiments)

厚さ～400nm の板状試料を 300kV-TEM（日立:HF-3300）にてホログラムを取得する。再生された位相分布から入射電子線の相互作用定数： $\sigma$ （ $\sigma = \pi / (\text{波長} \times \text{加速電圧})$ ）及び観察部位の膜厚： $t$  を用いて電位分布を得る。令和元年度は試料の調製方法を検討した。TEM を用いた観察は令和 2 年度に行う。

### iii. 論文/特許/学会発表(Publication/Patent/Presentation)

令和 2 年度に行う実験の進捗により学会発表を検討する。

## 課題番号 2 2 FeAl 合金の塑性誘起強磁性と力学機能の相関

- 課題提案者所属機関：京都大学
- 課題実施機関：日立製作所
- 研究内容

### i. 実験の概要(Abstract)

格子欠陥は力学特性をはじめとした諸物性に影響する重要な研究対象であるが、狭所性・低次元性等その特異な幾何学的特徴から欠陥そのものの物性研究は未だにチャレンジングな課題である。本研究では B2 構造有する FeAl 合金内に導入された拡張転位近傍の磁性を電子線ホログラフィーにより評価し、本合金の力学特性と転位磁気物性との相互作用を解明することを目的とする。

### ii. 実験内容(Experiments)

[-149] 方位から 3% 圧縮し (110) すべりを導入した FeAl 単結晶に対し、(110) 面に平行に FIB により薄片試料を切り出した。図 3 8 にその TEM 像を示す。転位が薄片面内に平行に多数導入していることが確認できる。本合金中ではこの転位は式  $\{110\}\langle 111\rangle \rightarrow 1/2\{110\}\langle 111\rangle + \text{APB} + 1/2\{110\}\langle 111\rangle$  に従い 2 本の分解転位となる。すなわち逆位相境界 (APB) 層が面内に平行に導入される。この転位間に導入される APB を含むように電子線ホログラムを取得し位相再生を行う。

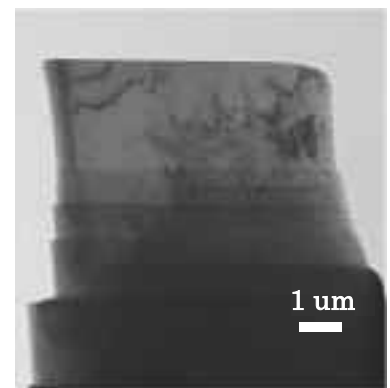


図 3 8. FeAl 薄片試料の TEM 像

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

位相再生の結果を図 3 9 に示す。分解転位を跨ぐ領域において 100K 以下の温度にて若干の位相勾配の増大が確認できた。これは同領域で面内磁束が増大していることを示唆する。これは欠陥を導入したバルク磁化測定から評価される欠陥の磁性のキュリー温度約 200K と矛盾しない結果である。一方で、磁束密度の定量性については疑問が残る。例えば 10K では APB 層を含む領域で磁束密度が約 2 倍近く増大することになるが、高々 2 原子層の APB を含むだけでこれ程の磁束変化はまず起こりえない。先行研究によると APB の磁化はマトリクス比で 1.5 倍程度とされる。透過厚さの大半がマトリクス領域であることを考慮すると、APB を含む領域での磁束の増大は基底状態で  $0.1 \sim 1\%$  程度と予想される。これは (APB 幅を 20nm とした時) APB 両端で  $1 \times 10^{-3} \text{rad}$  程度の余剰位相変化に相当する。この磁束密度の不一致の原因と



して①回折コントラストの影響②フレネル縞による Ghost③分解転位の磁性の寄与の3点が考えられる。今回、転位の場所を見失わないよう、(110)回折条件から十分に逃がすことは避けた。今後は①②の懸念を除くため、マーカを導入するなどし場所を特定したうえで強回折から十分逃がしてホログラム取得を試みる必要がある。また③に関しては今回の空間分解能では分解転位そのものの位相変化は評価できない。今後、位相分解能と空間分解能を十分向上させた条件で再観察を行っていきたい。

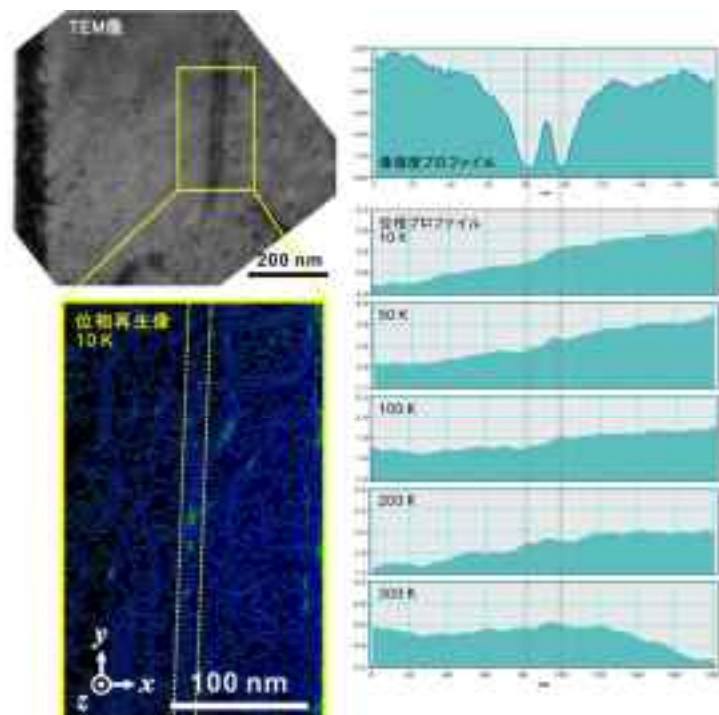


図3-9. 分解転位近傍のTEM像と位相再生像(10K)。黄枠部の像強度プロファイルと位相プロファイル。(空間分解能~8 nm)

課題番号 2 3 【非公開課題】につき開示しない

課題番号 2 4 Fe-X 系軟磁性粉末の磁気特性に与える結晶構造の影響

●課題提案者所属機関：産業技術総合研究所

●課題実施機関：九州大学

●研究内容：

i. 実験の概要(Abstract)

Fe-X 系軟磁性粉末 (X: Mn 等) の結晶学的微細構造と磁区構造の相関を、電子線ホログラフィーとローレンツ顕微鏡法で明らかにする。令和元年度は、これらの実験に利用する薄片試料の調製を行った。

ii. 実験内容(Experiments)

計画したすべての実験は令和 2 年度に行う。試料は、粒径が約 300～100  $\mu$  m の鉄粉である。磁区構造の解析には、300 kV-TEM による電子線ホログラフィーとローレンツ顕微鏡法を適用する。なお外部磁場印加を伴う実験（磁壁移動の動的観察）は、東北大・多元研の装置の利用を予定している。

## 課題番号 25 GaAs p-n 接合試料の電子線ホログラフィーにおけるドー ズレート依存性の評価

- 課題提案者所属機関: 古河電気工業株式会社
- 課題実施機関: ファインセラミックスセンター
- 研究内容:

### i. 実験の概要(Abstract)

これまでの課題において、ドーパント濃度  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の GaAs p-n 接合試料の電位分布を電子線ホログラフィーにより計測すると、p-n 間の電位差が小さく評価されることがわかっている。この問題の 1 つの原因として、電子照射に伴う電子-正孔対の生成により p-n 間の電位差が小さくなることが考えられる。電子照射による p-n 間電位差の減少は、試料に入射する電子線のドーズレートの増大に伴い顕著になるはずである。そこで、本課題では、ドーパント濃度  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の GaAs p-n 接合試料を様々なドーズレートで電子線ホログラフィー計測することで、電位分布に与える電子照射の影響の評価を試みた。

### ii. 実験内容(Experiments)

観察用試料は GaAs 基板(厚さ  $200 \text{ } \mu\text{m}$ ) 上に n-GaAs ( $1 \text{ } \mu\text{m}$ )、p-GaAs ( $1 \text{ } \mu\text{m}$ ) の順で積層したウェハを  $1\text{-}2\text{mm}$  角に劈開し、一部を収束イオンビームにより厚さ  $400 \text{ nm}$  に薄膜加工したものを用いた。電子線ホログラフィーは、ホログラフィー電子顕微鏡を用いてダブルバイプリズム条件で行った。ドーズレートはホログラフィー電子顕微鏡の収束レンズの電流量を変化させることで調整した。撮影したホログラムを位相シフト法により解析することで、位相分布像を再生した。

### iii. 結果と考察(Results and Discussion)

電子線ホログラムの撮影および位相シフト法による解析により得られた GaAs p-n 接合試料の位相分布を図 40 に示す。図 40 (a), (b), (c) は、それぞれドーズレート  $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $2.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $5.6 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  で取得したホログラムから再生した位相分布像である。いずれの位相分布像においても p-n 接合でコントラストが急峻に変化していることがわかる。また、ドーズレートが最も低い  $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  の位相分布像では、p-n 間の位相差がドーズレート  $2.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $5.6 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  のものよりも大きくなっていることがわかる。より定量的な解析のため、これら位相分布像から位相プロファイルを抽出した。得られた位相プロファイルを図 40 (d) に示している。図 40 (d) より、ドーズレートの増大に伴い、p-n 間の位相差が

減少していることがわかる。この結果は、電子照射により p-n 間の電位差が減少することを示唆するものである。

これらドーズレート  $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $2.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $5.6 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  の場合の位相プロファイルから p-n 間の位相差を計測すると、それぞれ 1.12 rad, 1.05 rad, 1.03 rad であり、確かにドーズレートの増大に伴い、減少していることがわかる。電子照射による電子-正孔対の生成の影響を抑制するには、よりドーズレートの低い条件で実験を行う必要がある。

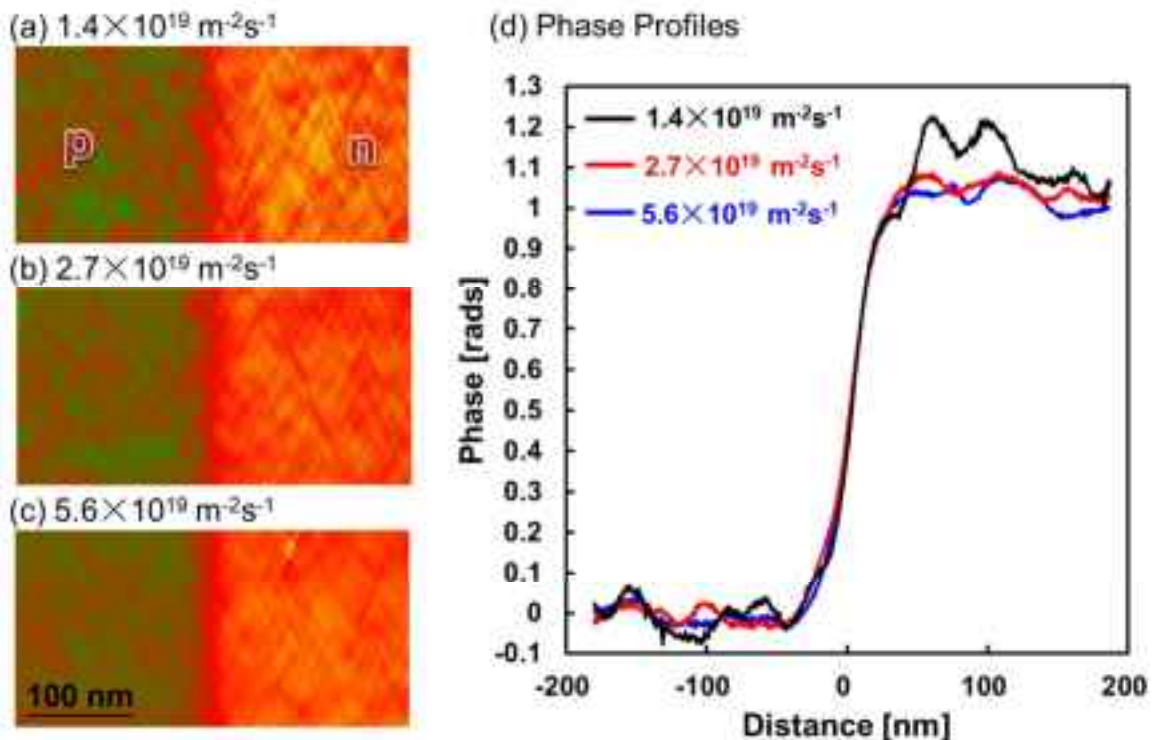


図 4.0 GaAs p-n 接合試料の位相分布のドーズレート依存性。  
(a), (b), (c) は、それぞれドーズレート  $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $2.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $5.6 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  で取得したホログラムから再生した位相分布像。(d) は、(a), (b), (c) から得られた位相プロファイル。

#### iv. まとめ (Conclusion)

ドーパント濃度  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の GaAs p-n 接合試料を様々なドーズレートで電子線ホログラフィー計測することで、電位分布に与える電子照射の影響を調査した。観察用試料は、収束イオンビームにより厚さ 400 nm に薄膜加工したものをを用いた。実験で取得した電子線ホログラムは、位相シフト法により解析することで位相分布を再生した。実験の結果、ドーズレート  $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $2.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $5.6 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  で取得した電子線ホログラムから再生した位相分布において、ドーズレートの増大に伴う p-n 間の位相差の減少が観測された。ドーズレート  $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $2.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$

<sup>1</sup>,  $5.6 \times 10^{19} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  の場合の p-n 間位相差は、それぞれ 1.12 rad, 1.05 rad, 1.03 rad であった。今後、この試料の電位分布を正確に計測するためには、電子照射の影響が抑制される条件、すなわち、より低ドーズレートで実験を行う必要がある。しかし、このような条件下で撮影される電子線ホログラムは、多くのノイズを含むため、位相計測精度が落ちてしまうと予想される。したがって、低ドーズレート条件でも高精度計測を可能とする方法、例えば、画像処理によりノイズを除去する方法などを利用しなければならない。あるいは、試料の導電性を向上させる、加速電圧を変化させる等、電子照射による電位分布変化を抑制する全く別のアプローチが必要となる。

## 2. 3 実施内容（実施機関）

### ①利用支援体制の構築

#### 【機関名：一般財団法人ファインセラミックスセンター】

本機関では、業務主任者兼担当責任者と、実施担当からなる支援体制を整備した。なお、実施担当は平成30年度から本機関で3名雇用（それぞれの本事業での人件費の支出率は、業務担当職員1名は30パーセント、もう1名は65パーセント、補助者1名は100パーセント）を継続し、平成31年度も本機関が担当すると決定された課題について、業務主任者と電子線ホログラフィーを専門とする実施担当で解析手法を検討し、手分けして実験と解析を担当した。古河電工（株）からの課題（表2の課題番号13、25）については、古河電工（株）から半導体物性理論に関する助言を得ながらデータの解釈を行った。また、古河電工社内でのTEM試料作製に対しては、ファインセラミックスセンター所内協力者から試料作製ノウハウに関する助言をした。なお、一部の企業（社名非公表、表2の課題番号1、10、19）との技術打ち合わせは、実施機関のメンバーが利用者側に出向いて行った。従来ファインセラミックスセンターが技術相談や共同研究を受けてきた企業・大学との連携関係を生かして本事業としての電磁場解析を発展させるとともに、新規利用者を開拓した（表2の課題番号10）。

また、単なる装置利用時間だけでなく、データ解析や事前準備に技術スタッフが従事する時間も考慮して装置使用料を算出した。なお、大学と民間企業で差を設けることも検討したが、利用者から見た不公平感を懸念して実施はしなかった。

#### 【機関名：国立大学法人九州大学超顕微解析研究センター】

本機関では、業務主任者兼担当責任者と、2名の実施担当（それぞれ技術系、事務系の業務を担当）からなる支援体制を整備した。技術系の実施担当は本事業で雇用する学術研究員（平成29年度から雇用を継続）であり、平成31年度も引き続き高度な技術支援業務を担当した。

本機関で実施される課題については、業務主任者、技術系の実施担当、課題申請者の三者による協議を経て、綿密な実験計画を立案した。業務主任者は課題進捗状況の掌握、データ解析や取り纏めの主導、装置の維持管理に関わる業務（修理が必要な事案への対処など）を行った。実施担当は、要請に応じて試料調製や予備的な電子顕微鏡観察を行うとともに、電子線ホログラフィーに関わるデータ収集とその解析、並びにホログラフィー電子顕微鏡のメンテナンス業務を実施した。物品購入契約等に関しては、事

務系の実施担当が業務支援にあたった。

なお令和2年3月には、短期雇用した専任スタッフが、平成31年度の事業で大量に取得された実験データの解析支援にあたった。その結果、東北大学の「電子線ホログラフィーを用いたハイブリッドナノ粒子の形態・電位分布観察」（表3：課題3）、大阪大学の「 $\text{VO}_2$  薄膜の微細構造と電位分布の解析」（表3：課題4）、九州工業大学の「電子線ホログラフィーを用いた遷移金属酸化物のドメイン構造解析」（表3：課題5）、および大阪府立大学の「電子線ホログラフィーを用いたアモルファス磁性合金の結晶化過程と磁気特性の評価」（表3：課題17）に対して、材料機能と局所構造・電磁場分布との相関解明に関わる詳細なデータ解析が完了し、平成31年度の業務を滞りなく遂行することができた。なお、課題の申請と審査が令和元年11月～12月に実施された産業技術総合研究所の「Fe-X系軟磁性粉末の磁気特性に与える結晶構造の影響」（表3：課題24）については、平成31年度は主に研究打合せと試料準備等が行われ、本格的な実験は令和2年度に実施される運びとなった。

【機関名：国立大学法人東北大学多元物質科学研究所】

本機関では、前任者の退官に伴い平成31年4月より多元物質科学研究所の所長を業務主任者とし、電子線ホログラフィーを専門とする担当責任者（研究者）に加え、高い技術力を有する技術室の実施担当からなる支援体制を整備し、日本電子(株)製の加速電圧300kV分析電子顕微鏡JEM-3000Fをホログラフィー観察に活用した。また、これまでに当研究所で開発された各種試料ホルダ：磁場印加ホルダを中心に、2探針ピエゾ駆動ホルダ、光照射ホルダ、熱電子照射ホルダ、冷却・加熱ホルダを活用し、共同研究に供した（平成31年度は表2の課題番号8にて磁場印加ホルダと加熱ホルダ、課題番号15にて2探針ピエゾ駆動ホルダ、課題番号18にて加熱ホルダを活用した）。なお、本事業では業務担当職員（学術研究員）1名を雇用した。

②共用機器

【機関名：一般財団法人ファインセラミックスセンター】

加速電圧300kVホログラフィー電子顕微鏡

試料ステージが上下二段あるダブル試料ステージでバイプリズムを4本装備しており、目的に合わせたフレキシブルな光学系が設定できる。また、低温冷却高温加熱、電圧印加、雰囲気遮断等特殊試料ホルダを装備している。

【機関名：国立大学法人九州大学超顕微解析研究センター】

加速電圧 300 kV ホログラフィー電子顕微鏡

観察対象や研究目的に応じて加速電圧を 100 kV、200 kV、300 kV の各条件に設定可能。二箇所を試料挿入位置を使い分けて、無磁場状態、磁場印加状態のいずれかの条件で試料を観察できる。試料に対する加熱、冷却（液体窒素を用いた冷却）、電圧印加を実施可能。永久磁石材料など、金属磁性材料の観察に有効なホログラム収集条件（レンズデータ）を整備している。

【機関名：国立大学法人東北大学多元物質科学研究所】

加速電圧 300 kV 分析電子顕微鏡

各種試料ホルダを使い分けることで、試料に対し外部磁場、電流プローブ、光照射、熱電子照射、温度コントロール等を行うことができ、その場観察に適した仕様になっている。他機関の電子顕微鏡にない特徴として、動的磁場下における磁壁の運動をローレンツ顕微鏡法でリアルタイムに観察できるシステムを組んでいる。

### ③人材育成

【機関名：一般財団法人ファインセラミックスセンター】

電子線ホログラフィー技術を活用できる企業人を育成することを目的の一つとして、以前から①出向社員の受け入れ、②オープンラボ制度（企業の分析・解析業務のためにファインセラミックスセンターの電子顕微鏡を活用していただく制度）による企業の電子線ホログラフィー活用の支援を行ってきた。この目的のために企業から出向社員を受け入れ、オープンラボ制度利用者を支援して、実験現場での技術指導を行った。平成31年度もこの状況を継続した。講演会や講習会などの座学だけではできない実践的技術指導を行い、企業で電子線ホログラフィーを活用できる人材の確実な育成と企業内での電子線ホログラフィー活用に貢献した。さらに、令和2年2月から令和3年3月までの予定で、半導体のホログラフィー観察技術習得を希望する修士課程学生の研修生として受け入れを開始した。

本事業を担当する博士研究員は、これまで本プラットフォームの仕事に従事して電子線ホログラフィーの基本的理解、高度な技術を習得しており、既存の技術を使えるだけでなく、さらに精度や信頼性の高いデータを取得するためのスパースコーディング等の新しい画像解析手法の開発と改良にも取り組んだ。



【機関名：国立大学法人九州大学超顕微解析研究センター】

本事業で雇用する技術系の実施担当（若手人材）は、平成29年度と平成30年度における事業の実施を通して、電子線ホログラフィーに関わる実験・解析技術のほか、電子顕微鏡の維持管理に関わる高度な技術を習得した。平成31年度は実施担当に対して以下の点に関わる指導機会を設けて将来的に電子線ホログラフィー関連の事業を担い得る人材の育成を行った。指導に関わる項目は（1）研究計画の立案、（2）進捗状況や難易度を踏まえた計画の調整・最適化、（3）実験データの解釈、（4）成果発表等の4点であった。

課題申請者とその研究グループに対しては、必要に応じて、業務主任者が電子線ホログラフィーの基礎や技術の紹介をセミナー形式、または研究討論の形で行い、特に本事業に参加する若手研究者、若手技術者、学生等のスキルアップを支援した。具体的には、令和元年12月27日に大阪府立大学（表2：課題番号17）の課題申請者に来学頂き、研究討論を行うとともに、同申請者の共同研究者（若手研究者）に対して電子線ホログラフィーの解析技術を指導した。令和2年1月7日には、業務主任者が産業技術総合研究所（表2：課題番号24）に出向き研究討論を行うとともに、若手研究者を含む同所の職員（3名）に対して電子線ホログラフィーの講習を行った。令和2年1月9日には、東北大学（表2：課題番号3）の課題申請者と大学院生1名を九州大学に招き研究討論を実施するとともに、ホログラフィー電子顕微鏡を実際に示しながら同手法の基礎を解説した。

この他にも、本機関・超顕微解析研究センターが主催する電子顕微鏡の技術研修会（平成31年4月～令和2年1月の期間に毎月開催）に参加した大学院生や若手研究員（合計368名）に対して、電子線ホログラフィーの紹介がなされた。令和元年5月8日～10日の期間には、本機関・超顕微解析研究センターを訪れたソウル大学（韓国）材料科学科の教授1名と大学院生2名に対して、研究討論と本事業の紹介、ならびに電子線ホログラフィーの指導を行った。令和元年7月30日には、本学・超顕微解析研究センターを訪れたアイントホーフェン工科大学（オランダ）化学専攻の大学生約40名に対して、電子線ホログラフィーに関係した講義と本プラットフォーム事業の紹介を行った。また、令和元年5月～11月の期間は、文部科学省スーパーサイエンスハイスクール事業に関連して、本機関・超顕微解析研究センターで実習を行った福岡県立城南高等学校の生徒5名に対して、電子線ホログラフィーを用いた先端研究の紹介と啓蒙活動を実施した。

【機関名：国立大学法人東北大学多元物質科学研究所】

国立大学法人東北大学（以下「東北大学」という）の加速電圧300 kV分析電子顕微鏡の実験補助と装置メンテナンスに必要な人材は、東北大学多元物質科学研究所の技術室に所属している。様々な研究内容に対応できるように、担当技術職員に対して実施担当が電子線ホログラフィーの基礎から応用までを指導し、専門的な情報を共有した。

学生に対して試料加工とホログラフィー観察の基礎のセミナー（実施日：令和元年11月21日。学生数1名）を行い、電磁場解析の重要性についての説明を行った。

その他、5大学附置研究所による「ダイナミック・アライアンス」などの共同研究の場に於いて、研究討論を通じて電子線ホログラフィーの解説を行った（令和元年7月24日、理研コロキウムにてダイナミック・アライアンスの共同研究者（阪大産研）と研究討論を行った）

④ノウハウ・データの蓄積・共有、利用システムの標準化、技術の高度化に向けた利用支援（利用と機器開発の連携拡大）等

【機関名：一般財団法人ファインセラミックスセンター】

担当した電磁場解析における経験を蓄積し最適な解析条件の標準化を図り、解析業務の効率化と迅速化に役立てた。また、技術の普及と利用者の拡大に活用した。特に平成31年度はスパースコーディングを用いた超高精度位相計測の最も標準的な手法をまとめ、今後の活用の基本として確立した。また、令和2年度の利用拡大を狙い、科研費を用いて光照射試料ホルダを作製した。

【機関名：国立大学法人九州大学超顕微解析研究センター】

平成30年度より、ファインセラミックスセンターによる支援のもと、本機関でも「縞走査法」による電子線ホログラムの位相再生に取り組んでいる。この手法は、単結晶基板上に成膜された物質の界面電位解析等において極めて有効である。平成31年度の事業では新たな展開として、縞走査法と、JST-CREST事業（九州大学、日立製作所、大阪大学によるグループ研究）で開発を進めている電子線ホログラムのノイズ除去技術との融合を図り、位相再生手法としての高度化を進めた。同手法は、大阪大学（表2：課題番号4）から提供されたモデル試料（TiO<sub>2</sub>単結晶基板にPt膜を蒸着した試料）に対して適用され、位相再生精度の向上が確認されている。

また、平成31年度は、日立製作所と共同で実施している電子線ホログラムの自動取り込み技術を完成することができた。日立製作所の超高圧電子顕微鏡と相補的に利用することで解析に用いるデータ総数を大幅に増加できる技術であり、本プラットフォーム事業を介した技術紹介や利用機会の提供に着手した。

なお、本機関では、平成31年度の第3四半期に、電子直接検出型のカメラをホログラフィー電子顕微鏡に設置した。従来のCCDカメラと比べて、電子に対する感度や、画像取り込みの時間の条件設定において優越性があり、同じく電子線照射に弱い試料のデータ収集等で威力を発揮し、特に東北大学の課題（表2：課題番号3）と、九州工業大学の課題（表2：課題番号5）において有効に利用された。

【機関名：国立大学法人東北大学多元物質科学研究所】

装置利用課題の経験を蓄積し計測業務と解析業務の効率化と迅速化に役立てた。具体的には課題番号8で得た試料加熱技術を課題番号18に役立てた。また、技術の普及と利用者の拡大ができた事例として課題番号8で得たノウハウにより新規課題番号18を引きうけることができたことがあげられる。

最近の東北大の取組として、電子回折が位相再生像に及ぼす効果の研究や、電場変動を検出する手段としての振幅再生像の新しい活用方法等の技術の高度化を進めた。それぞれの研究成果として次の二つの論文を発表した（Z. Akase, D. Shindo, “Effects of Dynamical Electron Diffraction on Phase Shift Detected by Electron Holography”, *Mater. Trans.* 60 (2019) 2120–2124.および T. Sato, N. Tsukida, M. Higo, H. Magara, Z. Akase, D. Shindo, N. Ohno, “Electron Holography Study of Secondary Electron Distribution around Charged Epoxy Resin”, *Mater Trans* 60 (2019) 2114–2119.）。

⑤その他

【機関名：一般財団法人ファインセラミックスセンター】

ファインセラミックスセンターでは平成20年を第1回として、以降2年に一度、最先端の顕微鏡と理論計算に関する国際シンポジウム（International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations: AMTC）を主催してきた。このシンポジウムは、電子線ホログラフィーをはじめ収差補正電子顕微鏡や環境顕微鏡などの最先端顕微鏡技術と理論計算を扱う世界トップクラスの国内外研究者を招き、最新の研究成果の披露と活発な議論の場を提供してきた。第6回AMTCは、

令和元年6月14日～15日に開催した。日本顕微鏡学会学術講演会と日程を連結させることにより相乗効果による両会議の活性化を図った。本事業で得られた成果も発表した。

令和元年6月16日～19日に名古屋市で開催された日本顕微鏡学会第75回学術講演会では、学会の設立70周年記念特別企画の一つとして国際シンポジウム（日独セミナー）が開催された。このセミナーは本事業の業務主任者もオーガナイザーとしてその企画立案・実施運営に貢献しており、電子線ホログラフィーに関するセッションも開設され、本事業の研究成果も発表した。

#### 【機関名：国立大学法人九州大学超顕微解析研究センター】

本機関・超顕微解析研究センターが実施機関となるナノテクノロジープラットフォーム事業との有機的な連携を行った。電子線ホログラフィー（物質材料の電磁場解析）を基軸とする本事業と、分析電子顕微鏡や試料作製装置の利用機会を提供するナノテクノロジープラットフォーム事業を関与させることで、試料作製、結晶の微細構造解析、電磁場解析を九州大学で一括して行う環境を整備・提供した。平成31年度の事業では、大阪大学の課題（表2：課題番号4）において、ナノテクノロジープラットフォームが備える試料作製装置（集束イオンビーム加工装置）と構造解析専用電子顕微鏡（走査透過電子顕微鏡）を用いて h-BN/ $\text{VO}_2$  試料の界面構造を予め理解したうえで、電子線ホログラフィーによる電磁場解析を実施し、構造と電磁場に関わる多面的な研究を推進することができた。

電子線ホログラフィーの新規課題を設定する上でも、先端的・汎用的な分析電子顕微鏡技術との連動は有効な場合があり、必要な課題に対しては本機関の関連装置を本事業で活用した。実例として、本年度実施した九州工業大学の課題（表2：課題番号5）では、 $(\text{Co, Fe, Mn})_3\text{O}_4$  試料が示す複雑な微細構造と磁場分布の関係を明らかにするために、分析電子顕微鏡法（エネルギー分散型 X 線分光法）による組成分析と電子線ホログラフィーによる磁束密度解析を組み合わせた、重要な結果を得るに至った。

なお、④の項目で述べたように九州大学、日立製作所、大阪大学の共同研究として、電子線ホログラムのノイズ除去に関わる技術開発を進めている（JST-CRESTに関わる研究課題）。平成31年度は、同ノイズ除去技術の実試料への応用を進めた。具体的には、JST-CREST事業で開発したノイズ除去技術を大阪大学の課題（表2：課題番号4）に関わるモデル試料に適用し、ノイズと微弱な信号を正確に分離した。さらに上記のノイズ除去技術は、縞走査法を用いた位相再生（ファインセラミッ

クスセンターとの連携) に対して有効なことが実証されており、今後の更なる活用が期待される。

【機関名：国立大学法人東北大学多元物質科学研究所】

利用料収入は、装置の維持管理に充てられる。東北大学では大学の装置利用を外部に公開する場合、その利用料金は予測される維持管理・修理費を基に大学側で算定されており、プラットフォームの利用料金もこれに準じたものとした。装置を維持するにあたり、平成29年度までは利用料収入は年度を跨いだ予算執行が学内の運営規則で認められていなかったが、平成30年度から運営規則が改善され、利用料収入による財源は次年度に繰り越すことを可能となったことで、高額なメンテナンスにも対応が可能となった。また、これまでの使用実績に基づき、令和2年度から装置使用料金が改定されることが決まった。このように学内でも持続的な運営のための改善が進められた。

## 2. 4 協力機関の取組状況

協力機関として国立研究開発法人理化学研究所創発物性科学研究センターは日立製作所と共同で電子線ホログラフィーの研究開発を長年推進してきた。装置共用の実施機関としては参画しないが、電子線ホログラフィー技術の発展のための必要に応じて技術的な協力が相互にできる体制にある。令和元年度は日立製作所、九州大学および東北大学の装置利用課題に関する技術的なアドバイスを受けた。日立製作所は利用課題16「一つの電子計測器と二人の観測者による電子計測実験」を実行するにあたって、電子を一個ずつカウントするような微少電流条件での検出用カメラのバックグラウンドシグナルに関するアドバイスを受けた。九州大学は磁性体試料の観察において磁場由来の電子の位相変化に重畳してしまう、試料形態の不均一さ（表面の凹凸など）に関わる議論を実施した。東北大学は、実施担当者が令和2年1月29日に理研を訪れ、利用課題15「電子線ホログラフィーと探針ホルダを活用した材料の電気特性評価」における高周波電流印加実験の打ち合わせを行った。

もう一つの協力機関である大阪大学超高压電子顕微鏡センターは超高压電子顕微鏡の共同利用に関して長年の実績があり運用上の多くのノウハウを蓄積していることから、主に運用面での各種アドバイスをもらうことを想定していたが、平成31度は特にアドバイスを求める必要が生じなかった。

### Ⅲ. フォローアップ調査項目

#### 3. 1 分野融合・新興領域の拡大について

日立製作所と九州大学はJST-CREST・さきがけ複合領域「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」に参画しており、そこで開発した技術を装置利用課題に適用することで高度情報処理分野との融合を図った。これについてはⅡ. 2. 2⑥、⑧1) および⑧4)、Ⅱ. 2. 3④の九州大学の記載箇所にて言及した。

また、Ⅱ. 2. 3④のファインセラミックスセンターの記載箇所でも言及したように、高度情報処理技術の一つであるスパースコーディングの適用を進めた。ファインセラミックスセンターの自主研究で平成30年度からスパースコーディングなどの情報科学的手法を駆使した電子顕微鏡画像の高精度高感度解析に関する研究を進めており、そこで開発した手法を電子線ホログラフィーに応用すると、高い感度や精度で電場や磁場の解析ができることが明らかになった。平成31年度は、特に表2の課題13、25に適用し有効であった。これをうけてJFCCの戦略技術領域の一つとして、「新規材料創生・開発期間短縮に向けたAI活用による微細構造画像の解析・処理技術」が設定された。

#### 3. 2 スタートアップ支援について

ファインセラミックスセンターでは、株式会社日立ハイテクからの出向研究員に本事業の電子顕微鏡解析を担当してもらい、高度なホログラフィー技術を完全習得してもらった。令和2年3月末に帰社したが、その担当者が得たデータが、日本顕微鏡学会が出版する欧文誌「Microscopy」の69巻1号（令和2年1月発行）の表紙に掲載され、世界をリードする技術を身に着けたことが実証された。

九州大学では、平成31年度に着任した准教授1名と助教1名（いずれも30代の若手研究者）に対して、電子線ホログラフィーに関わる講義と技術講習の機会を令和2年2月に提供し、新たな研究テーマの立案とその推進に対する支援を行った。両名とも、令和2年度には電子線ホログラフィーに関わる電磁場解析の研究を行う運びである。また、Ⅱ. 2. 3③の項に記す通り、産業技術総合研究所の課題（表2：課題番号24）に参画する同所の若手研究者に対して電子線ホログラフィーを紹介し、電磁場のイメージングを活用した新たな研究の展開を支援した。

### 3. 3 共同研究・受託研究について

日立製作所、九州大学、ファインセラミックスセンターにおいては平成31年度の装置利用をきっかけとして共同研究に進む可能性のある案件がそれぞれ生まれた。令和2年3月時点で契約は完了していない。

### 3. 4 試作機の導入・利用による技術の高度化について

Ⅱ. 2. 3④項のファインセラミックスセンターに関する記載のとおり科研費を用いて光照射試料ホルダを作製した。

### 3. 5 ノウハウ・データ共有について

Ⅱ. 2. 2⑥、および、Ⅱ. 2. 3④に実施機関ごとに記載した。

### 3. 6 技術専門職のスキル向上・キャリア形成について

Ⅱ. 2. 2③人材育成 およびⅡ. 2. 3③人材育成 の項に実施機関ごとに記載した。

### 3. 7 利用アンケートについて

平成31年度、利用アンケートという形式での意見収集は行わなかったため、利用者からのコメントを数例記載する。

本PF全体に対する全般的なコメントとして、専任オペレータによりデータ取得や結果の解釈までのサポートを受けられることで、操作や解析が難しく活用をあきらめていたホログラフィー電子顕微鏡を利用でき、研究の加速に大きく貢献した旨の意見を多数得ている。また、高額であり購入困難、またはそもそも購入できない大規模な装置を利用できることは、限られた予算で研究している研究者、特に若手研究者からも大いに感謝されている。特に日立製作所の共用機器である、収差補正機能付き超高压電顕（原子分解能・ホログラフィー電子顕微鏡）を簡単な申請で利用できることに対する感謝と驚きの声が寄せられた。

また、ファインセラミックスセンターでは、表2（課題番号13）では、「不活性層への電圧印加の結果が興味深い。ここまですく考えないといけないのですね」とのコメントを頂いた。表2（課題番号25）には、「これほど小さい電位変化はこれまで検出できなかった」という高評価を頂いた。表2の（1）（課題番号19）では、「有機半導体内部の電位分布はこれまで実際に観察されたことがなかったので、有機デバイスの設計開発に非常に大きく貢献しそうだ」との評価を受けた。表2（課題番号9）では、利用者から「ナノワイヤーへの光照射電子線ホログラフィーは、大

変興味深い。フォトニクスなど、新しい分野への発展に期待している」とコメントを頂いた。表2（課題番号6）では、「今回は n 型 GaN の解析をしてもらったが、p 型 GaN の濃度やパターンの評価ができると、さらに新デバイスの設計、開発に役立つので期待している」とコメントいただいた。

九州大学の利用者からは、ナノテクノロジープラットフォーム事業との連携により、材料の電磁場解析と、試料調製や結晶構造解析等の周辺課題を一括して推進できたことが非常に効果的であったというコメントがあった。