

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H04115

研究課題名(和文) 非弾性電子散乱における電子回折効果を顕在化したスピンモーメントナノイメージング

研究課題名(英文) Nano-level imaging of spin states by utilizing diffraction effects on inelastic electron scattering

研究代表者

巽 一徹 (Tatsumi, Kazuyoshi)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

研究者番号：00372532

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、わずか10 nmの結晶サイズで足る、物質中のスピン状態の新しい元素選択的計測法を構築し、スピントロニクス材料のナノスピンイメージングに応用することである。電子磁気直線二色性信号(EMLD)は、スピンモーメントの大きなスピネル酸化物で有意な差スペクトルを計測した。特型EELS絞りをを用いた電子磁気円二色性(EMCD)は、装置の不安定性により望みの信号を得られていない。鉄のL2,3端EELSを計測しそのデータを統計解析することで、理論予測された原子面分解能EMCDを実証した。これは、条件付きではあるが、目標に掲げた10nmの結晶サイズでのスピン状態の分析法を達成したと言える。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is development of element-selective spin state analysis with crystalline size required as small as 10 nm. We expect the developed method will be applied to nano-level imaging of spin states in spintronics materials. We consider the acquisition method of electron magnetic circular dichroism (EMCD) and electron magnetic linear dichroism (EMLD). On electron magnetic linear dichroism (EMLD), a significant spectral difference is obtained from a spinel-type oxide with largely spin-polarized. Electron magnetic circular dichroism with a specially designed EELS aperture is not realized, due to instability of the experimental apparatus. Through statistical analysis on measured Fe L2,3 EELS data, we confirm atomic plane resolution EMCD, which was theoretically proposed before the measurement. This means that we accomplish spin-state analysis with required sample crystalline size smaller than 10 nm.

研究分野：材料科学

キーワード：走査透過電子顕微鏡 電子線エネルギー損失分光 電子磁気円二色性 電子磁気直線二色性 統計解析

1. 研究開始当初の背景

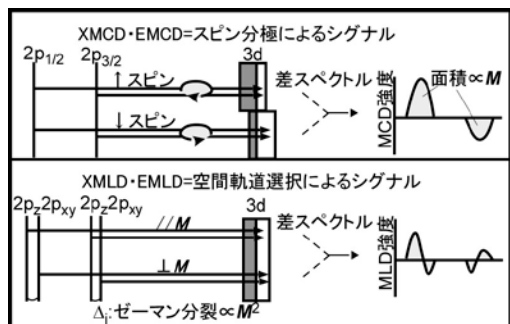


図 1. 磁気円偏光及び直線偏光 2 色性における電子遷移とスピンモーメント  $M$

高輝度放射光施設における X 線分光では種々の理論的示唆が実証され、特にスピンモーメント  $M$  に起因した偏光 2 色性(図 1)において、X 線磁気円 2 色性(XMCD)は磁性分析ツールとして確立している。直線偏光 2 色性(XMLD)は強度が励起原子の  $M$  の 2 乗に強度が比例し、反強磁性物質にも適用できる利点をもつ。電子線エネルギー損失分光(EELS)における磁気 2 色性(EMCD)は Schattschneider らが実証し、その後、理論式や総和則が示されてきた。EELS における直線偏光 2 色性(EMLD)は試行的実験データのみ存在する。

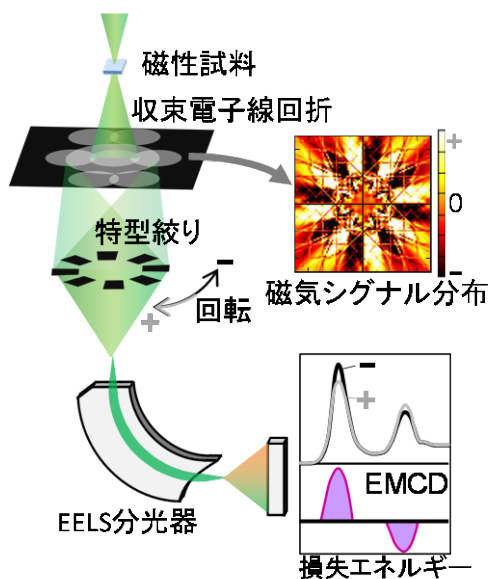


図 2. 収束電子線と特型絞りをを用いた EMCD

EMCD の理論的理解は、らせん状の位相をもつ vortex ビームによる EMCD 類似信号の報告に刺激され、大きく進展した。少数の回折波を用いる従来法であろうが vortex ビームであろうが、非弾性散乱の遷移行列に寄与する高速電子波が位相差  $\pi/2$  で干渉し、磁気信号の起源である動的混合構造因子の虚数項が EELS の断面積に頭れると整理された。理論計算によると、収束電子線の回折ディスク内においても、位相差が  $\pi/2$  をとる領域が存

在する。そこで、図 2 のように特型絞りをを用いてこの部分で選択的に EELS を得る構想を申請者は掲げる。特型絞りを回折図形に対して相対的に回転することで XMCD の右・左偏向に対応する+・-の磁気信号を得る。

2. 研究の目的

本研究の目的は、わずか 10 nm の結晶サイズで足る、物質中のスピン状態の新しい元素選択的計測法を構築し、スピントロニクス材料のナノスピイメージングに応用することである。その達成のため、EMCD/EMLD について以下のようなロードマップを掲げる。  
 <堅牢な EMCD 測定スキームの構築> 1. 特型絞りをを用いた EMCD の実証 2. 収束電子線を用いた試料照射領域の削減による試料制約の緩和 3. 簡便に交換・回転可能な絞り挿入システムの開発による計測ルーチン化 4. 走査モードでの計測：高い再現性の EMCD 計測の実現

<EMLD 計測の実証と高空間分解能化> 1. 原理の実証 2. 理論計算予測との整合性を検証 3. 高空間分解能化-> 球面収差補正器と精密制限視野絞りをを用いたナノ EMLD 4. 反強磁性・強磁性ナノ多層膜での計測デモ。

3. 研究の方法

①回転機構を組み込んだ EELS 絞りの切り替え装置を作製し、図 2 に示した特型絞りの回転を可能にし、これまで比較的大きな EMCD 信号強度を得てきた  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  を試験試料として磁気信号計測を試みた。  
 ②同試料を用いて、カメラ長を変えることで、非弾性散乱の運動量輸送ベクトルの方向を制御し、EMLD 信号が得られるか調査した。  
 ③二波励起での高分解能 STEM-EELS において、原子面を挟んだ両側に異なる符号の EMCD 信号が含まれることが理論的に共同研究者により示された(原子面分解能 EMCD)。bcc 鉄の薄膜試料において、理論で指定された条件でえた EELS データの統計解析から、磁気信号取得を試みた。これは、ウプサラ大のグループとの共同研究である。

4. 研究成果

① 特型 EELS 絞りをを用いた EMCD 計測の試み  
 特型の EELS 検出器絞りをを用いた電子磁気円 2 色性信号の取得は、回折パターンに対して EELS 特型絞りをを精密に配置するのが困難であること、収差により絞りによる 2 色性の選択が不十分であること、この 2 点が問題となり、有意な EMCD 信号は得られなかった。  
 ②カメラ長を変えての EMLD 計測  
 電子磁気直線 2 色性信号は、スピンモーメントの大きなスピネル酸化物で有意な差スペクトルを計測した。再現性のある信号となっているが、電子線の入射方向を変えた場合の差スペクトルの変化は顕著にみられず、同じスピネル構造をもった  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  での XMLD の理論計算・実験で示されたものと対応していない。

より精密な理論予測と実験結果の一致が、EMLDの実証には必要となっている。

### ③原子面分解能 EMCD

スウェーデンのウプサラ大の研究グループと共同で、ナノサイズの鉄単結晶を蒸着させた薄膜を用いて理論計算から予測されたSTEM-EELSの測定条件で鉄のL<sub>2,3</sub>端EELSを計測しそのデータを統計解析することで、原子面ごとに互いに逆符号の電子磁気円二色性信号を得られることを実証した(図3)。

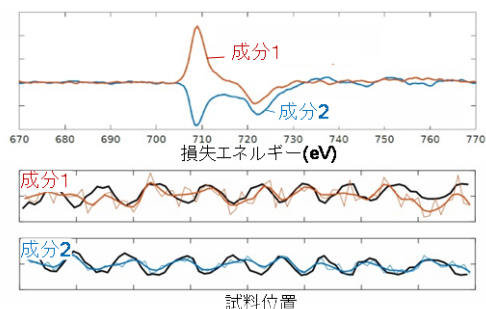


図3. 統計分解(Canonical Polyadic Decomposition)により得られた二つの成分のスペクトル形状(上)とその強度の原子面垂直方向のプロファイル(下). 成分1がEMCD信号. 空間分布には, HAADF像強度も黒線で示している.

図3の統計分解で得たスペクトル成分2のうち, 成分2は, 電子チャネリング効果により内殻励起の強度が増減するためと考えられる. これは, 磁気信号を得るために, 原子面の左右の領域でのスペクトルの差分を取

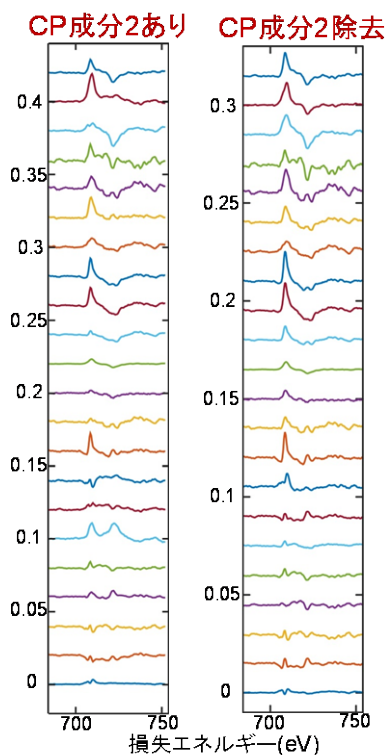


図4. 統計解析で抽出した成分2を含めての差スペクトル(左)と含めない場合での差スペクトル(右)

める際に擾乱となる. そこで, 統計分解で成分2を除去し, 原子面の左右の領域でのスペクトル差を調べた. 計測したEELSデータ22のデータのうち, 差スペクトルがEMCDに類似していたものは50%以上となった(図4).

球面収差補正の機能を有したSTEMとEELSを必要とするが, 原子面間隔の分解能でEMCD信号を得ることができるため, 条件付きではあるが, 目標に掲げた10 nmの結晶サイズでのスピン状態の分析法を達成したと言える. 同様の目標を目指す手法に, らせん電子波を用いた電子磁気円二色性信号計測が挙げられるが, 対象とする試料形態への要求が極めて高いことが理論的に予想されており, 実現されていない.

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- [1] S. Muto and K. Tatsumi, Microscopy, 査読有り, Vol. 66 (2017) 38.
- [2] J. Ruzs, S. Muto, J. Spiegelberg, A. Roman, K. Tatsumi, et al., Nat. Commun., 査読有り, Vol. 7 (2016) 12672.

[学会発表] (計 2 件)

- [1] 巽 一蔵, 低ランク行列多元分解を用いたナノ領域磁性スペクトル解析, 「スパースモデリングの深化と高次元データ駆動科学の創成」2016年度公開シンポジウム.
- [2] 巽 一蔵, スパースモデリングを用いた電子顕微鏡分光物性マッピング, 「スパースモデリングの深化と高次元データ駆動科学の創成」2017年度公開シンポジウム.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

巽 一蔵 (TATSUMI, Kazuyoshi) ・ 未来材料・システム研究所・准教授  
研究者番号: 00372532

(2) 研究分担者

( )

研究者番号:

(3) 連携研究者

武藤 俊介 ( MUTO, Shunsuke ) ・未来  
材料・システム研究所・教授  
研究者番号： 20209985

(4) 研究協力者

Jan Ruzs (RUSZ, Jan) ・ウプサラ大学・  
天文物理学研究所・助教授

Jakob Spiegelberg (SPIEGELBERG, Jakob)  
ウプサラ大学・天文物理学研究所・博士後期  
課程学生