

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13404

研究課題名(和文)コヒーレント偏極電子線による時間相関測定

研究課題名(英文)Time-Correlation Measurement using Coherent Spin-Polarized Electron Beam

研究代表者

桑原 真人 (Kawahara, Makoto)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

研究者番号：50377933

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：コヒーレント偏極電子線を用いて強度相関測定を実施し、透過電子顕微鏡において真の量子干渉効果の観測を目指した。コヒーレント偏極電子線を用いた強度相関測定系を構築に成功し、スピン偏極電子/無偏極電子の切り替えによるアンチバンチングの変化測定を実施にすに至った。その測定系時間分解性能は、コインシデンス検出器を除く計測システムにおいて時間分解能48.3 psを実現した。次に、本計測器を用いて10%程度のアンチバンチング量を検出することに成功し、さらにスピン偏極度により増強効果が僅かながら現れることを実証した。これにより、空間電荷効果と2次の干渉効果が重畳したアンチバンチングであることが見出された。

研究成果の概要(英文)：To observe a quantum interference effect in a transmission electron microscope (TEM), an intensity correlation was performed using a coherent spin-polarized electron waves.

We have succeeded in development of a detection system for the intensity correlation in a spin-polarized TEM. The measurement system has 48.3-ps time-resolution for coincidence detection between two electrons. Using the developed detectors, we have gotten observations of anti-bunching effect and the dependence on spin-polarization. We could measure the anti-bunching rate of 10% by using the coherent spin-polarized electron beam, and also observed enhancement effect of spin-polarization slightly. Consequently, it is revealed that the anti-bunching effect includes both space charge effect and second-order interference effect.

研究分野：電子顕微鏡

キーワード：スピン 強度干渉 量子効果 コインシデンス

1. 研究開始当初の背景

光子に代表されるボソンでは、ハンブリー・ブラウンとツイスの実験に代表される強度干渉実験により量子干渉を実現している。特に光子数状態、スクイーズド状態などの量子状態を如実に観測することができる。一方、電子線はフェルミ統計に従うことから、反交換関係により強度干渉(二次の相関関数)においてアンチバンチングを起こす。この強度干渉実験は、電界放出型電子源から放出された電子線を用いてアンチバンチング効果を観測するに至っている。しかしながら、フェルミオン由来のアンチバンチングであるのか、空間電荷効果によるものなのか明確な区別ができておらず、議論の余地が残っている。さらに実験結果におけるアンチバンチングは不明瞭でありS/N比の向上が必要である。一方、我々はこれまでにスピン偏極透過電子顕微鏡(SP-TEM)の開発に成功した。これにより、高い偏極度、高い空間干渉性を持った電子線生成を実現し、一次相関測定をバイプリズムによる干渉実験により既に実現している。そこで、我々はこのコヒーレント偏極電子線を用いて量子干渉実験が可能であると考えた。

2. 研究の目的

電子はフェルミ統計に従うため、強度干渉にアンチバンチング効果を引き起こす。しかしながら、フェルミ統計由来のアンチバンチングであるのか空間電荷効果によるものなのか明確な分離測定手法がない。一方、我々は SP-TEM の開発の成功により、高い偏極度、高い空間干渉性を持った電子線生成を実現し、バイプリズムによる一次相関測定に成功した。そこで、我々はこのコヒーレント偏極電子線を用いて強度相関測定を実施し、スピン偏極電子/無偏極電子の切り替えによるアンチバンチングの変化を測定することとした。スピン偏極度を操作することによりアンチバンチングの物理を明確にし、電子による強度干渉実験の実証を目指す。さらに二次相関測定による時間コヒーレンス測定手法の確立を透過電子顕微鏡において実現する。

3. 研究の方法

二対の単電子検出器を SP-TEM に組み込

むことで、強度干渉実験を実施する。また平行して入力パルス信号間の時間相関を測定するための同時計数計測系を構築する。これらを用いてまずアンチバンチング現象が観測できることを確かめる。その後、スピン偏極度を変化させながらアンチバンチング強度を観測する。また電子線にパルス変調をかけることで、時間相関測定における不感時間のノイズ成分を除去することで、計測手法の観点からも、精度の高い測定方法の確立を目指す。二電子相関において、スピン偏極度 90% と高い場合にアンチバンチング効果の増幅が実現されるかを観測する。

4. 研究成果

SP-TEM は、フォトカソード型電子銃を搭載する TEM として、世界で唯一そのコヒーレンス長が電子顕微鏡観察に耐えうる十分な長さ有している。さらにスピン偏極度は、電子銃を駆動するレーザーを円偏光にすることで80%以上のスピン偏極度を持ったコヒーレント電子線発生が可能である。また、このレーザーの偏光を直線偏光に変えることで無偏極(0%)にすることも容易にできることから、スピン偏極度依存についても計測可能な TEM である。本機をベースに、新たに強度相関測定を実現する計測器ならびにアナログ高速信号処理を含む測定系の構築を実施した。

① 電子顕微鏡用コインシデンス計測装置の開発

検出器として単電子検出が可能なマルチチャンネルプレート(MCP)を用いた小型の2分割検出器(コインシデンス計測器)の開発を実施した。MCP を介して約 10^5 倍に増幅した単一電子信号を2分割検出/読出し電極に照射することで、空間的に分割したそれぞれの領域に同時に電子を検出する確率を検出することができる(図1)。さらに、同時検出をナノ秒以下の高速で実現するため、MCP は2段構成を選択した。これにより読出しパルス信号は数ナノ秒に抑えることに成功した。しかしながら、MCP 段数低減のため増幅率は低い。このため、後段の信号処理を可能にする十分なパルス電圧を確保するため、高速前置アンプおよび高速タイミングアンプを用いて、単電子検出による時間差計測を可能にした。

図2に、本実験装置とその検出信号処理の概略図を示す。この信号処理系は、完全に同時に発生する信号を入力した場合、図3に示す同時計測係数を出力した。これにより、コインシデンス検出器を除く計測システムは、ガウス関数フィットから時間分解能を見積もったところ 48.3 ps の分解能を実現していることを確認した。

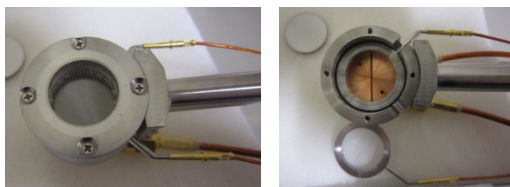


図1. コインシデンス検出器、(a)電子線検出部、(b)2分割検出・信号読出し電位部

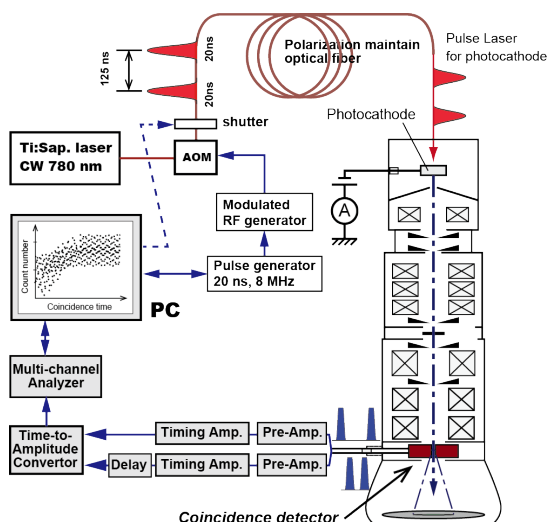


図2. 検出信号処理システムの概略図

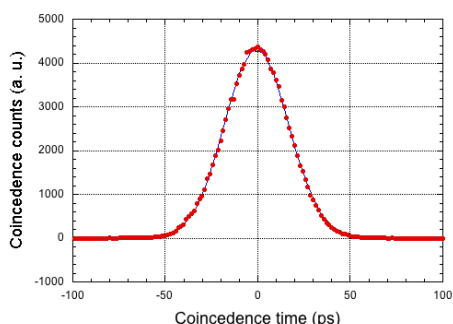


図3. 計測システムの時間分解能計測

② コインシデンス計測装置の SP-TEM 装置への導入

新たに開発したコインシデンス計測器を SP-TEM の観察室蛍光板上部に導入した。図4にインストールされたコインシデンス計測器と前置高速アンプを示す。側面から挿入・退避する形を取ることで、強度干渉実験と通常の TEM

観察を両立できる工夫を施し、電子ビームの空間およびエネルギー広がりとそのコヒーレンス長を確認しながら計測が可能な状態を実現した。また、前置高速アンプを出た信号は速やかにタイミングアンプにて所定の電圧パルスに増幅できるよう、図5に示す配置で信号処理回路を設置し、ノイズ成分の低減を実現した。実際に、電子線が検出器に入射していない状態で、同時検出イベントは 10events/hour 以下となっている。さらに、計測器制御ソフト Labview をベースに計測システムの自動化を進めることで、MCA から出力された信号計測とレーザー、円偏光制御の3つを同期させ、1度の測定に何十時間と要する本実験を効率よく実施することに成功した。これにより、測定手順の短縮化、人的エラーの排除により、より精度の高い量子干渉実験条件を作り出すことに成功した。

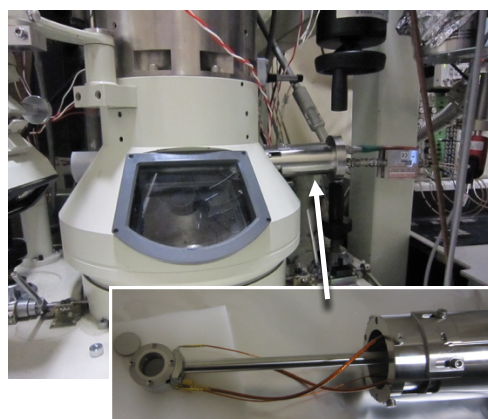


図4. SP-TEM 蛍光板観察室と上部側に配置されたコインシデンス検出器

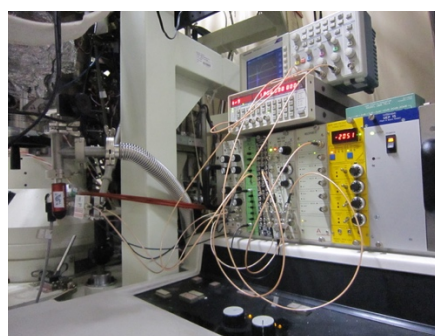


図5. SP-TEM 右側に配置した信号処理回路

③ ナノ秒スピン偏極パルス電子線による2電子同時検出計数計測(強度干渉実験)

計測可能な2電子検出の時間幅は 20 ns である。このため、これ以上の時間差を有する電子検出は、観測に不要である上に、TAC 回路の繰り返し周波数上限をこえることで不感時間を増大させる。このため、電子銃駆動レーザー

を AOM 強度変調機によりパルス幅 20ns、繰り返し周波数 8MHz の時間変調を加え、効率よく同時計数測定を実現できるようにした。この 20ns パルス電子線を用いて、2電子同時計数実験を実施した結果を図6に示す。横軸に2電子検出の時間差、縦軸にそのイベント数を示している。このイベント数は 1.46ps 毎のイベント数を表している。通常、2電子間に相関がない場合(古典的な場合)、そのイベント数はガウス関数に従う。図7にそのフィッティング曲線を示す。実験データとフィッティング関数は中心部以外ではよく一致しているが、中心部ではフィッティング関数からイベント数が減少する方向にずれていることが確認される。このズレが量子干渉または空間電荷効果に起因するアンチバンチング効果であり、この現象を SP-TEM を用いて確認することに成功した。

次に、この古典状態からのズレを抽出したグラフを図7に示す。ここで、縦軸は古典状態との差を、フィッティング曲線を用いて規格化している。古典状態からの差は 0 ns において負になっていることが確認できる。また、古典状態と一致する領域において、正負両方向に膨らみを持っている。これは統計誤差を含むゆらぎである。このゆらぎは中心のアンチバンチングを除く部分では正負対象に分布していることから、古典状態であるガウス関数は正しい関数であることが分かる。もし、中心部にアンチバンチングが出ないようにフィッティングを実施すると、左右ともに中心からずれた位置に山をもつ関数となり、その関数は 10ns 以上離れた所で 0 に落ち着く関数となる。これは、スピン偏極電子線がもつ干渉長から考慮して、強度干渉では実現し得ない効果である。これらの理由から、アンチバンチングが実現されていると結論付けられる。

計測系の時間分解能のため、アンチバンチング形状はコインシデンス時間方向にボケを生じ、アンチバンチングの大きさも小さくなっている。それにもかかわらず、本実験では十分にアンチバンチング効果を実証するに至った。今後は、時間分解能からデコンボリューションをすることで、アンチバンチング効果をより詳細に議論していく予定である。

④スピン偏極電子/無偏極電子の切り替えによるアンチバンチングの変化の測定
次に、上記アンチバンチング実験と同様の計

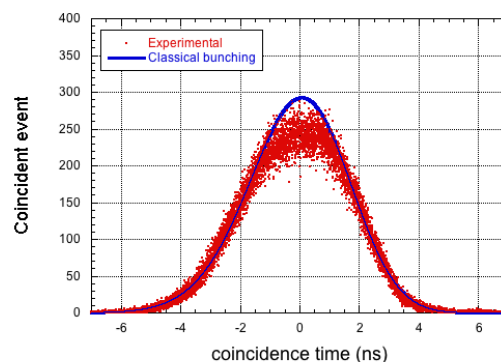


図6. 2電子同時検出計数とその時間差(同時計数時間)

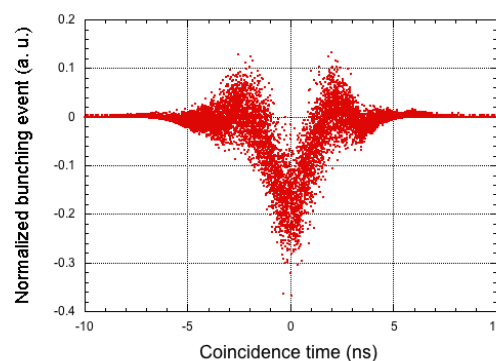


図7. 古典状態によるフィッティング関数からの差。縦軸は同時検出時間 0ps におけるイベント数で規格化している。

測条件下で、スピン偏極度を 0% と 80% の 2 種類について実験を実施した。右巻きスピン方向に偏極した電子にするため、電子線駆動レーザーの偏光度を液晶偏光制御素子により 98% の左巻き偏光を生成することで実現した。一方、無偏極状態の電子線は、電子源駆動レーザーの円偏光度を直線偏光にすることで実現する。この 2 種類の偏極状態における古典状態からのズレを図8に示す。スピン偏極した状態におけるアンチバンチングには、無偏極状態に比較して僅かながら差が生じていることを観測した。その差は約 4% 程度であるが、スピン偏極電子による実験結果が無偏極状態に比べてアンチバンチング効果が大きいことが示された。

この結果、アンチバンチングにはスピン偏極度により増強効果が僅かながら現れることを実証した。この結果、空間電荷効果と真の量子干渉効果の重畳したアンチバンチングであることが見出された。また、フェルミ統計によるアンチバンチング効果をコヒーレント偏極電子線を用いて検

証することに成功した。今後は、検出器への照射条件を変えて空間コヒーレンス長依存を計測することで、より詳細な量子干渉項の抽出を行い、真の量子相関測定を実現する。

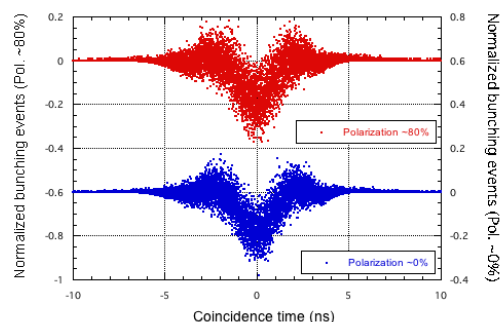


図8. スピン偏極度0%と約80%における同時計測実験結果

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

1. “The Boersch effect in a picosecond pulsed electron beam emitted from a semiconductor photocathode”, M. Kuwahara, Y. Nambo, K. Aoki, K. Sameshima, X. G. Jin, T. Ujihara, H. Asano, K. Saitoh, Y. Takeda, N. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, 109, 013108 (2016). (査読有)
2. “スピン偏極パルス TEM における超高速時間分解能とそのビーム品質”, 桑原真人, 宇治原徹, 浅野秀文, 齋藤晃, 田中信夫, 顕微鏡, Vol.50, 151-155 (2016). (査読有)

[学会発表] (計 16 件)

1. NEA 光陰極を用いたコヒーレント時間分解 TEM の開発, 桑原真人, 青木幸太, 宇治原徹, 齋藤晃, 田中信夫, 真空ナノエレクトロニクス第 158 委員会 第 116 回研究会, 2017 年 3 月 2-3 日, アクトシティ浜松コングレスセンター、浜松市
2. Beam properties of picosecond bunched electrons in a time-resolved TEM using a semiconductor photocathode, 桑原真人, 青木幸太, 南保由人, 宇治原徹, 田中信夫, 齋藤晃, 2016 年度 顕微鏡学会・超高分解能顕微鏡法分科会 研究会, 2017 年 2 月 18-19 日, マホロバ・マインズ三浦, 三浦市

3. Coherence Volume of Electron Wavepacket Emitted from a Semiconductor Photocathode in a Transmission Electron Microscope, M. Kuwahara, K. Aoki, H. Asano, T. Ujihara, N. Tanaka and K. Saitoh, Electron Holography Workshop 2017, 2017 年 2 月 15-17 日, 日立製作所基礎研究センター, 埼玉県比企郡
4. 半導体光陰極を用いた次世代透過電子顕微鏡の開発, 桑原真人, ナノステイニング学会電子線応用技術研究会第9回研究会, 2016 年 12 月 2 日, 日立ハイテクノロジーズ東京本社, 東京
5. 半導体フォトカソードを用いたパルス透過電子顕微鏡, 桑原真人, 日本顕微鏡学会関西支部・平成 28 年度特別講演会, 2016 年 10 月 29 日, 京都大学宇治キャンパス, 京都府宇治市
6. 半導体光陰極を利用した TEM における電子波特性, 桑原真人, 宇治原徹, 田中信夫, 齋藤晃, 日本顕微鏡学会・電子光学設計技術研究部会・平成28年度研究会, 2016 年 10 月 8 日, 名城大学, 名古屋市
7. コヒーレントパルス透過電子顕微鏡の光励起および緩和過程観察への応用, 桑原真人, 青木幸太, 宇治原徹, 浅野秀文, 齋藤晃, 田中信夫, 日本物理学会2016秋季大会, 2016 年 9 月 13 日, 金沢
8. 半導体光陰極を用いた次世代透過電子顕微鏡の開発, 桑原真人, 青木幸太, 鈴木潤士, 宇治原徹, 浅野秀文, 齋藤晃, 田中信夫, 第77回応用物理学会秋季大会, 2016 年 9 月 15 日, 朱鷺メッセ, 新潟市
9. Coherence of a pulsed electron beam extracted from a semiconductor photocathode in transmission electron microscope, M. Kuwahara, K. Aoki, H. Suzuki, H. Asano, T. Ujihara, K. Saitoh, N. Tanaka, The 16th European Microscopy Congress, 2016 年 8 月 28 日-9 月 2 日, 仏国リヨン
10. 光陰極平面から放出されるパルス電子線の空間電荷効果, 桑原真人, 青木幸太, 鈴木潤士, 宇治原徹, 齋藤晃, 田中信夫, 日本顕微鏡学会 第 72 回学術講演会, 2016 年 6 月 14-16 日, 仙台国際センター, 仙台市
11. コヒーレントスピン偏極電子線をもちいた時間分解顕微法の開発, 桑原真人, 日本物理学会第71回年次大会, 2016 年 3 月 21 日-23 日, 東北学院大学, 仙台市

12. Spinor interference in transmission electron microscope , M. Kuwahara, K. Sameshima, K. Aoki, H. Asano, T. Ujihara, K. Saitoh, N. Tanaka , Internatinal Symposium on EcoTopia Science, 2015年11月27-29日名古屋大学, 名古屋市
13. “Time-resolved LVTEM using spin-polarized electron beam”, M. Kuwahara, Y. Nambo, T. Ujihara, H. Asano, K. Saitoh, N. Tanaka, *Young Scientists Satellite Meeting in The 2nd East-Asia Microscopy Conference*, 28th Nov. 2015, Awaji, Japan
14. スピン偏極透過電子顕微鏡が拓く材料解析の可能性 , 桑原真人 , 日本物理学会2015年秋季大会 , 2015年9月16-19日, 関西大学, 大阪府吹田市
15. スピン偏極電子源とその磁性体観察の可能性 , 桑原真人 , 第26回基礎セミナー「ナノスピン構造の作製・評価技術」, 2015年 8月3日, 名古屋大学, 名古屋市
16. “負の電子親和性をもつエミッタから放出される電子の性質”, 桑原真人, 鮫島健輔, 青木幸太, 宇治原徹, 浅野秀文, 齋藤晃, 田中信夫, 日本顕微鏡学会第71回学術講演会, 2015年5月15日, 京都国際会館, 京都市

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 4 件)

名称: 反射電子を検出する走査電子顕微鏡
発明者: 桑原真人、田中信夫、宇治原徹、齋藤晃

権利者: 名古屋大学

種類: 特許

番号: 特開 2017-004774

公開年月日: 2017年1月5日

国内外の別: 国内

名称: スピン偏極電子線のコヒーレンス測定装置と、その利用方法

発明者: 桑原真人、田中信夫、宇治原徹、齋藤晃

種類: 特許

番号: WO2016/056425

公開年月日: 2016年4月14日

国内外の別: 国外

名称: スピンコヒーレンス測定装置

発明者: 桑原真人、田中信夫、齋藤晃、宇治原徹

権利者: 名古屋大学

種類: 特許

番号: PCT/JP2015/077393

出願年月日: 2015年9月28日

国内外の別: 国内

名称: 反射電子を検出する走査電子顕微鏡

発明者: 桑原真人、田中信夫、齋藤晃、宇治原徹

権利者: 名古屋大学

種類: 特許

番号: 特願 2015-117920

出願年月日: 2015年6月11日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://sirius.imass.nagoya-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

桑原真人 (Makoto KUWAHARA)

名古屋大学 未来材料・システム研究所 准教授

研究者番号: 50377933

(2) 研究分担者

田中信夫 (Nobuo TANAKA)

名古屋大学 未来材料・システム研究所 研究員

研究者番号: 40126876

石田高史 (Nobuo ISHIDA)

名古屋大学 未来材料・システム研究所 助教

研究者番号: 60766525