

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的研究(開拓)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K20555

研究課題名(和文)空間電磁場の3次元分布を可視化・計測するシュリーレン電子顕微鏡法の開発

研究課題名(英文)Development of electron schlieren microscopy to visualize and measure the three-dimensional distribution of spatial electromagnetic fields

研究代表者

原田 研(Harada, Ken)

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・上級研究員

研究者番号：20212160

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,000,000円

研究成果の概要(和文)：電子線干渉に強く依存しない位相分布の可視化法としてのシュリーレン法と、3次元計測法のラミノグラフィーに注目し、観察試料の内部だけでなく、試料周りの広範囲の空間電磁場を可視化・計測できるシュリーレン電子顕微鏡法を開発した。この手法では非干渉型の熱電子型透過電子顕微鏡を用いて、電子線ホログラフィーを凌ぐ広視野の電磁場観察を実現できた。

さらに、汎用型の走査型電子/イオン顕微鏡を用いたSub-mm四方の空間電磁場が観察できるLorentz SEM/SIM法の開発、500mTの強磁場印加状態で試料観察が可能なLorentz顕微鏡法、および電子線ホログラフィーの開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、汎用型の電子顕微鏡を用いて電子線ホログラフィーなど実用化されている干渉計測法では計測が困難な、広範囲の空間電磁場の可視化を可能とする技術開発を行った。sub-mmサイズからsub- μ mサイズまでを広く、かつ廉価にカバーできる電子顕微鏡手法である。今後、バイオ系を含む様々な装置開発、材料のマクロスコピックからメソスコピックな物性解析に応用されるだけでなく、光学の原理、結像理論に根差している手法であるため、解析法の習得を通して、これら分野の教育にも利用されると期待される。

研究成果の概要(英文)：Schlieren electron microscopy that can visualize and measure a spatial electromagnetic field distribution inside the materials and around the specimens was developed by Schlieren microscopy as phase observation methods and by laminography as three-dimensional measurement techniques. With this developed microscopy by using non-interference-type thermal transmission electron microscopes, we succeeded to observe electromagnetic fields with a wider view area than that by electron holography.

Furthermore, Lorentz SEM/SIM methods that can visualize electromagnetic field in sub-mm area by using conventional scanning electron/ion microscopes, and Lorentz microscopy and electron holography that can observe the high electromagnetic fields of 500 mT were also developed.

As a result of this research, many technical methods for observing and visualizing the spatial electromagnetic fields have been practically realized and can be used for various applications.

研究分野：電子線物理学および電子顕微鏡学

キーワード：シュリーレン法 ホロコーン照明法 ラミノグラフィー トリノグラフィー 空間電磁場 広視野観察

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

磁性材料の試料内部の磁化分布は、ローレンツ顕微鏡法(フレネル法やフーコー法)や小角電子回折、位相板を用いた位相差顕微鏡法、そして電子線ホログラフィーなど複数の手法が実用化されている。中でも参照波との干渉を利用する電子線ホログラフィーは、感度と定量性を兼ね備え、さらに試料外部の電磁場分布も観測できる唯一の手法とされている。しかし、電子線ホログラフィーでは計測可能な空間範囲は電子波の可干渉距離の制約を受けるため数 μm に限られている。また、高精度計測のためには、参照波への空間電磁場の影響が無視できる程度まで小さくできなければならない。さらに、電子線を波として用いるため、電界放出形電子源を搭載したハイエンドな装置を必要としており、汎用性、普及性の面では遅々たる状況であった。

研究提案者と研究分担者は、ホロコーン照明法(傾斜周回照明法)を磁性材料の磁化分布観察に応用し、ホロコーン・フーコー(HCF)法を開発していた[1, 2]。このHCF法は、明視野と暗視野の両フーコー像中に磁区と磁壁の両方を同時にインフォーカスで観察できる新規な観察法(第3のローレンツ顕微鏡法)であった。さらにホロコーン・フーコー(HCF)法における明視野条件から暗視野条件への過渡条件(シュリーレン条件)では、試料外側の空間磁場分布の情報が可視化できることを見出していた。そこで、このシュリーレン条件を微調整するとともに、周回照明を方位角ごとに分割して処理するラミノグラフィーの技術を適用し、HCF法の電磁場計測法への拡張を提案した。

2. 研究の目的

磁性材料や誘電体などの試料内部の電磁場分布だけでなく、試料外部に発生する電磁場を可視化・計測できるシュリーレン電子顕微鏡法の開発を目指した。また、この手法が計測可能とする広範囲の電磁場分布は、従来の電子線ホログラフィーでは確認できない範囲となる(それ自体が目的である)ことから、本手法の精度・特徴の確認のため、シュリーレン法以外の電子顕微鏡を用いた電磁場計測・解析手法の開発も目指した。これにより、それぞれの手法が相互にダブルチェック可能となる。さらに、本手法の今後の発展・普及を促進するため、新規開発する手法は、廉価、汎用性に有利な従来型装置での実現を目指した。

3. 研究の方法

複数の開発研究を行ったが、いずれも研究方法は同じである。以下に列挙する。

- (1) 考案した計測法の被計測物理量は何か、計測精度などから、実現可能性を検討する。
- (2) 新計測法の特徴を活かした装置構成を検討し、実際の装置に組み上げる。
- (3) 新手法の特徴を最もよく示す材料、試料、実験条件を探索する。
- (4) 得られた実験結果の解析・評価を行い、計測が正しく行われていることを確認する。
- (5) 上記の再現性を確認する。

4. 研究成果

(1) ホロコーン・シュリーレン法による電磁場観察法の開発

シュリーレン法は結像レンズの後焦点位置（角度空間）にナイフエッジなどを配置し、試料像の角度情報の一部を遮蔽して結像する非対称結像法である。図1にホロコーン・シュリーレン法の原理を示す。円形開口絞りをを用い、入射ビームの傾斜角度を一定に保ちつつ、光軸を周回するように照明する。この時、方位角ごとに画像を記録し、各々の画像の処理によって、試料による入射ビームの偏向方向・偏向量をベクトル量として得る。電子線の場合、電磁場とのローレンツ偏向を記録できるので、試料及びその周辺部の電磁場を記録・再生することができる。この原理を用いた観測手法（シュリーレン電子顕微鏡法）を開発した。[3, 4]

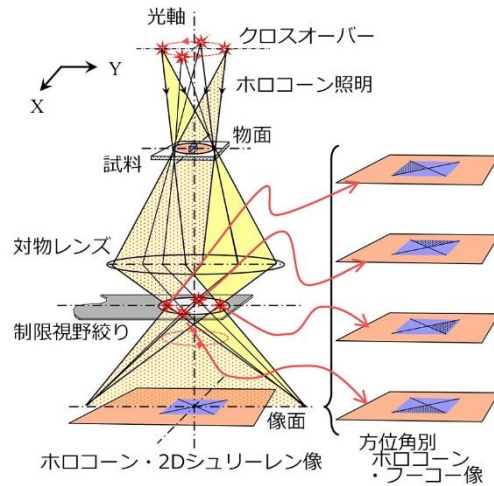


図1 ホロコーン照明法の原理

図2に電磁場観察を行った結果を示す。図2(a)は、ラテックス球とその表面電荷による電場の分布を、図2(b)は、磁性体薄膜から真空部に漏れ出す磁場分布を可視化したものである。(a)では電場の強度を輝度、方位を色で表示している。(b)では磁場の方位を矢頭と青/赤の二色で、強度を矢頭の大きさでベクトル表示している。さらに、この手法とトモグラフィーの手法とを合わせることができれば、空間電磁場の3次元計測が実現できると考えている。

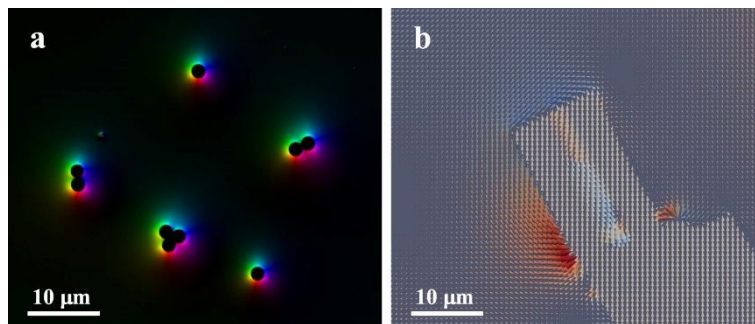


図2 ホロコーン・シュリーレン法による空間電磁場の観察、(a)電場、(b)磁場

(2) ローレンツ SEM/SIM 法 (LSEM/LSIM) の開発

電子線ホログラフィーでは計測不可能な、広範囲の空間電磁場を計測する手法の開発を目指したもので、観察する試料と光軸方向に位置をずらして格子を配置し、試料をインフォーカスで観察した時の格子の像の歪みを定量的に解析することにより、試料近傍の電磁場を定量的に可視化する計測法 (LSEM/LSIM) を開発した[5, 6]。本手法は、荷電粒子線であればその粒子種・電荷の正負を問わない。また、走査型/透過型のいずれの装置でも実現可能である。さらに汎用型の走査電子顕微鏡 (SEM) で実現可能であり、廉価・汎用性に優れている。

図3は、SEM/SIM での実験手法を示す模式図である。試料の絶縁性高分子球を取り付けた金属棒の下方に格子を配置し、電子線、およびイオンビームで走査観察を行った、高分子球のチャージアップにより、歪んだ格子像が観察された(図4)。この歪を定量解析することにより高分子球周辺部の空間電場を定量的に投影観察した結果が図5である。なお、磁場でも同様に投影計測が可能であることを確認している。

なお、カナダ・アルバータ大学で開発が進められているオープンソース電子顕微鏡(NanoMi) [7]に搭載する準備を進めており、今後、広く普及することを目指している。

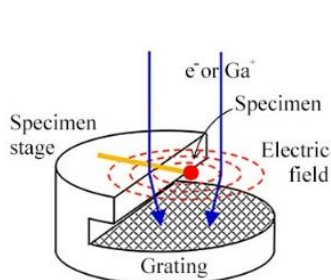


図3 LSEMの実験方法

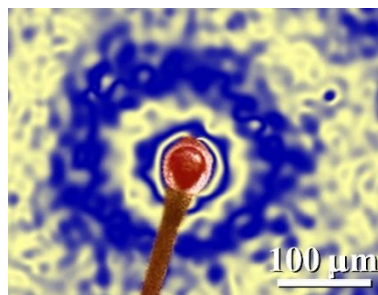


図5 投影電場分布の等値線表示

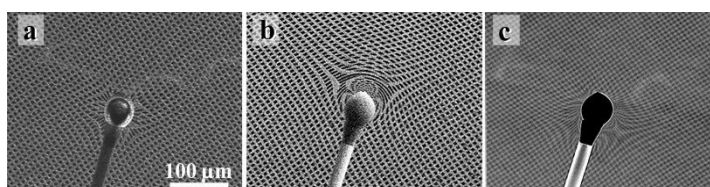


図4 LSEM/LSIM法の観察結果

(a) 負電荷のSEM像、(b) 正電荷のSEM像、(c) 正電荷のSIM像

(3) 高磁場対応ローレンツ法・電子線ホログラフィー

従来型の電子線ホログラフィーやローレンツ顕微鏡法においても、磁場観察に関してその汎用性を高めるべく、光学系の見直しを行い高磁場観察が可能な観察方法を開発した。[8, 9]

図6に光学系の模式図を示す。本手法の基本となる考え方は、対物レンズと第一中間レンズを組みレンズとして用いることにより試料への磁場印加条件と、観察光学をほぼ独立して制御できる光学系とした点である。これにより、磁場印加条件 0 mT から±500 mT まで、連続観察が可能となった。さらに電子線ホログラフィーとローレンツ法とが、類似の光学系で実現できるため、2つの観察手法の比較が容易となった。

図7は、光軸方向へ磁場印加した状態での Sc ドープ M 型ヘキサフェライト ($\text{BaFe}_{12-x}\text{Mg}_{0.05}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$) の、ローレンツ像とホログラフィーによる再生位相像である。印加磁場の変化により、ストライプ磁区が Type I および Type II のバブル磁区に変化する様子が示されている。

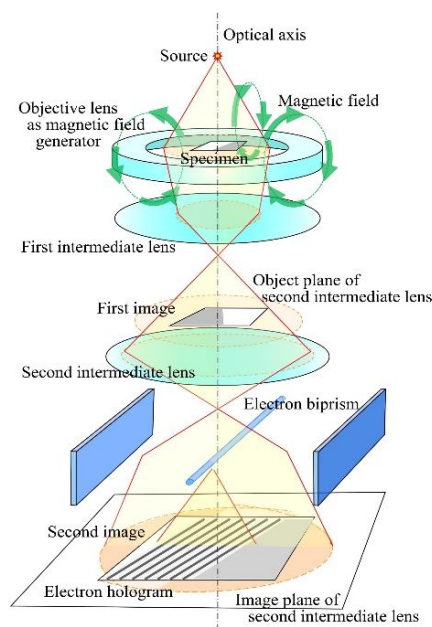


図6 高磁場観察光学系

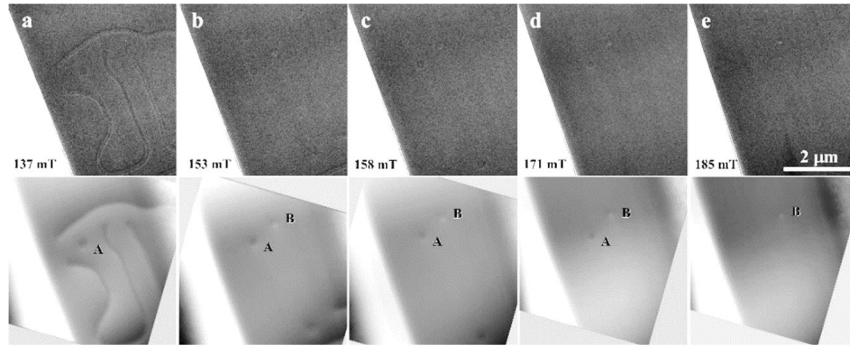


図7 ヘキサフェライトのストライプ磁区からバブル磁区への変化の様子
 上段：ローレンツ像、下段：再生位相像

(4) トリゴノグラフィー [10]

トリゴノグラフィーとは、直交3方向からの3枚の投影像をのみ用いて試料の3次元像を得る手法である。製図学における第3角法と同じ原理による。直交する3方向からの観測は、3次元空間では最も情報量の多いデータ群となる。従来のステレオ観測では、図8に示したノミの刃形構造を知ることはできない。

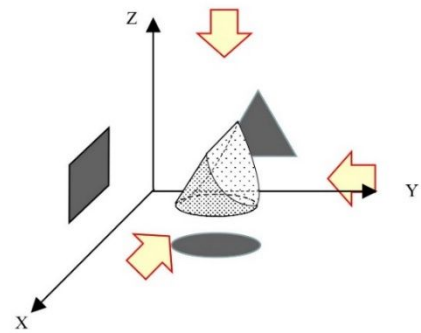


図8 トリゴノクラフィの原理

図9は、ノミの刃形構造物の直交する3方向からのSEM像である。○、△、□の外形を示している。図10は、図9の3枚の画像より得られた立体形状の再生例で、水平方向と垂直方向の回転描画である。

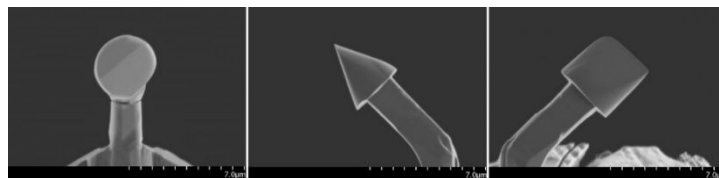


図9 直交3方向からのSEM像

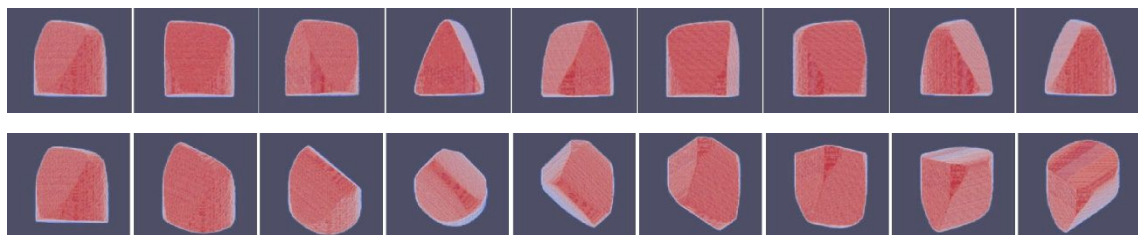


図10 立体形状の再生例、上段：水平方向の連続回転描画、下段：垂直方向の連続回転描画

<参考文献>

- [1] K. Harada et al. APEX, **12**, (2919) 042003.
- [2] 原田 研 他, 特許 第 7193694 号, 米国特許 第 11551907 号.
- [3] K. Harada et al., Microscopy & Microanalysis, **27**, (2021) 2318.
- [4] 原田 研, 日本磁気学会 第 235 研究会資料 (2022/01/19) pp. 25 – 32.
- [5] K. Harada et al., Microscopy, **71**, (2022) 93.
- [6] K. Harada et al., Microscopy & Microanalysis, **28**, (2022) 780.
- [7] M. Marek et al., Micron, **163**, (2022) 103362.
- [8] K. Harada et al., Micron, **160**, (2022) 103306.
- [9] K. Harada et al., Microscopy & Microanalysis, **28**, (2022) 110.
- [10] 原田 研 他, 特許 特願 2021-49446.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Nakajima Hiroshi, Kotani Atsuhiko, Harada Ken, Mori Shigeo	4. 巻 60
2. 論文標題 Two types of magnetic bubbles in MnNiGa observed via Lorentz microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 123003 ~ 123003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac34d2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Harada Ken, Nakajima Hiroshi, Mori Shigeo, Takahashi Yoshio	4. 巻 27
2. 論文標題 Schlieren imaging of spatial magnetic fields by hollow-cone illumination	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Microscopy and Microanalysis	6. 最初と最後の頁 2318 ~ 2319
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1017/S1431927621008333	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Harada Ken, Shimada Keiko, Takahashi Yoshio	4. 巻 71
2. 論文標題 Lorentz scanning electron/ion microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 93 ~ 97
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1093/jmicro/dfab054	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 原田 研	4. 巻 235
2. 論文標題 磁区構造を可視化する新しいローレンツ電子顕微鏡法	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本磁気学会 第235研究会/第82回スピントロニクス専門研究会 (2022年01月19日) 資料	6. 最初と最後の頁 25 ~ 32
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kotani Atsuhiko, Nakajima Hiroshi, Kawaguchi Atsushi, Fujibayashi Yukihiro, Uchihashi Kento, Shimada Keiko, Harada Ken, Mori Shigeo	4. 巻 59
2. 論文標題 Magnetic bubbles in an M-type hexagonal ferrite observed by hollow-cone Foucault imaging and small-angle electron diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 095003 ~ 095003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/aba9e9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Harada Ken	4. 巻 70
2. 論文標題 Interference and interferometry in electron holography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 3 ~ 16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1093/jmicro/dfaa033	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mori Shigeo, Nakajima Hiroshi, Kotani Atsuhiko, Harada Ken	4. 巻 70
2. 論文標題 Recent advances in small-angle electron diffraction and Lorentz microscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 59 ~ 68
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1093/jmicro/dfaa048	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mori Shigeo, Kotani Atsuhiko, Harada Ken	4. 巻 26
2. 論文標題 Hollow-cone Foucault Imaging of Magnetic Textures in Hexagonal Ferrite ; BaFe _{10.35} Sc _{1.6} Mg _{0.05} O ₁₉	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Microscopy and Microanalysis	6. 最初と最後の頁 1766 ~ 1769
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1017/S1431927620019273	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mori Shigeo, Kawaguchi A, Harada Ken	4. 巻 26
2. 論文標題 Hollow-cone Foucault Imaging of Magnetic Microstructures in Large Magnetostrictive FeGa Alloy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Microscopy and Microanalysis	6. 最初と最後の頁 2146 ~ 2147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1017/S1431927620020590	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Ken Harada, Hiroshi Nakajima, Shigeo, Yoshimasa A. Ono and Yoshio Takahashi
2. 発表標題 Schlieren imaging of magnetic fields with hollow-cone electron beams
3. 学会等名 Sixth Conference on Frontiers of Aberration Corrected Electron Microscopy (PIC02021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ken Harada, Hiroshi Nakajima, Shigeo Mori and Yoshio Takahashi
2. 発表標題 Schlieren imaging of spatial magnetic fields by hollow-cone illumination
3. 学会等名 Microscopy & Microanalysis 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原田 研
2. 発表標題 電子らせん波の干渉計測
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第77回学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 明石哲也、高橋由夫、原田 研
2. 発表標題 マッハ・ツェンダー形振幅分割電子波干渉計
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中島宏、大迫明弘、高橋由夫、原田 研、森茂生
2. 発表標題 シュリーレン法を用いた磁場分布観察とその方位角依存性
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 ナノ結晶軟磁性合金の微細構造と磁気特性
2. 発表標題 大迫明弘、吉年規治、中島宏、石井悠衣、原田 研、森茂生
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中島右裕、児玉哲司、明石哲也、高橋由夫、森茂生、原田 研
2. 発表標題 電子計数画像の点分布の空間パターン II
3. 学会等名 電気・電子・情報関係学会 東海支部連合大会（令和3年度）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大迫明弘、吉年規治、中島宏、石井悠衣、原田 研、森茂生
2. 発表標題 ナノ結晶軟磁性材料の磁気特性と微細構造
3. 学会等名 日本金属学会第169回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原田 研、鳶田恵子、高橋由夫
2. 発表標題 回折格子を用いた走査電子顕微鏡による電磁場計測
3. 学会等名 日本表面真空学会学術講演会（2021年）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原田 研
2. 発表標題 磁区構造を可視化する新しいローレンツ電子顕微鏡法
3. 学会等名 日本磁気学会第235回研究会（2022年）（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shigeo Mori, Atsushi Kawaguchi, Atsuhiko Kotani, Hiroshi Numakura, Yui Ishii and Ken Harada
2. 発表標題 Hollow-cone Foucault imaging of magnetic microstructures in large magnetostrictive FeGa alloy
3. 学会等名 Microscopy & Microanalysis 2020（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shigeo Mori, Atsuhiko Kotani and Ken Harada
2. 発表標題 Hollow-cone Foucault imaging of magnetic textures in hexagonal ferrite; BaFe _{10.35} Sc _{1.6} Mg _{0.05} O ₁₉
3. 学会等名 Microscopy & Microanalysis 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原田 研、森茂生、高橋由夫
2. 発表標題 ホロコーン照明を用いた空間磁場のシュリーレン観察法
3. 学会等名 日本表面真空学会学術講演会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原田 研、中島宏、森茂生、高橋由夫
2. 発表標題 ホロコーン照明を用いた磁場分布のシュリーレン観察法の検討
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 3次元観察装置、及び方法	発明者 原田 研、森茂生、中島宏	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-49446	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	森 茂生 (Mori Shigeo) (20251613)	大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授 (24403)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 協力者	中島 宏 (Nakajima Hiroshi)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関