

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K14488

研究課題名（和文）音響波を用いたナノスケール磁気・強誘電ドメインの生成と駆動

研究課題名（英文）Nanoscale dynamics of magnetic and ferroelectric domains induced by acoustic waves

研究代表者

中村 飛鳥（Nakamura, Asuka）

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・研究員

研究者番号：90823584

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では超高速時間分解電子顕微鏡法を用いた、ナノ構造中の音響波と磁気・強誘電ドメイン構造を可視化手法の開発を行い、これによる固体の超高速ダイナミクスの研究を行った。音響波の振幅や原子変位方向まで定量評価可能な5次元走査型電子顕微鏡法を確立し、シリコン薄片中を伝搬する音響波の特性を明らかにした。さらにこの手法を磁気構造の可視化が可能なローレンツ電子顕微鏡法と組み合わせることで、代表的なスピントロニクス材料である鉄ガーネット系の磁性体において、ナノ構造に特有な音響波と還流磁区の結合を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、これまでの超高速時間分解電子顕微鏡の課題であった物理量の定量評価法である5次元走査型透過電子顕微鏡法を世界で初めて確立し、ピコ秒スケールでの歪み・磁場・電場の定量評価に成功した。これにより明らかになった音響波と還流磁区との結合は、従来の磁歪とは異なる磁気音響結合の可能性があり、物質中における歪み・磁場・電場といった複数自由度の同時観測は、今後様々な物質中の自由度間の結合を明らかにすることに利用できる」と期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a new methodology for ultrafast transmission electron microscopy that can detect acoustic waves and magnetic/ferroelectric domain structures in nanomaterials. We established five-dimensional scanning transmission electron microscopy, which reveals the amplitude and polarization of nanometric acoustic waves in thin silicon plates. By combining this method with Lorentz electron microscopy, which can visualize the magnetic structure, we further reveal characteristic coupling between the acoustic wave and vortex core.

研究分野：超高速ダイナミクス

キーワード：超高速時間分解電子顕微鏡 5次元走査型透過電子顕微鏡 ナノ音響波 磁気音響結合

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、磁気、強誘電ドメインを生成、駆動することで動作する高速かつ低消費電力のデバイスが注目を集めている。金属ナノドットなどのナノ構造体へパルス光を照射することで生成される「ナノ音響波」は、ナノメートル領域の波長を持つため、微小ドメインをピコ秒からナノ秒といった超高速領域で、制御する外場として期待される。このようなナノ音響波と磁気・強誘電ドメインの間の結合について詳細に知るためには、ナノメートルスケールの空間分解能だけでなく、歪みや磁場、電場といった多様な自由度を観測することが可能な計測手法の開発が必須である。また、例えば歪みは大きさを持つテンソルであり、テンソルの各成分の大きさまで定量評価できるような手法が望ましい。

### 2. 研究の目的

本研究では、既存の超高速時間分解電子顕微鏡において、音響波や磁場・電場といった多様な自由度を定量評価することが可能な新たな測定手法を開発し、さらに音響波と磁気ドメインとの結合を明らかにする。走査型透過電子顕微鏡は収束電子回折や差分位相コントラスト法といった多様な測定手法により、歪みや磁場・電場を定量評価可能な手法であり、この手法の時間分解能を既存のミリ秒レベルからピコ秒レベルにまで飛躍的に引き上げることで、磁性体・誘電体におけるナノ音響波とドメインの結合を明らかにすることができる。これにより、将来的にメモリデバイス等として期待される磁気ドメインの駆動メカニズムについて知見を得る。

### 3. 研究の方法

上記のような目的のため、本研究では多様な物理量の定量評価が可能な5次元走査型透過電子顕微鏡(5D-STEM)の開発を行う。これにより、光励起後の固体の超高速ダイナミクスの過程における音響波や磁化の大きさなど定量評価法を確立する。さらに、デモンストレーションとしてシリコン薄片中における音響波の振幅と原子変位方向を決定する。磁化に関してはFeNiPdP合金における強磁性磁化が、光励起によって消失する過程を、差分位相コントラスト法により明らかにする。さらに、これらの手法を駆使することによって代表的なスピントロニクス材料であるイットリウム鉄ガーネット(YIG)試料の音響波と磁化の結合を調べることで、音響波と磁気ドメインの間の結合を明らかにする。

### 4. 研究成果

#### (1) 5次元走査型透過電子顕微鏡(5D-STEM)の開発

図1(a)に本研究で開発した5D-STEM装置の概要を示す。1.2 eVの赤外光をビームスプリッターで2つに分け、その片方を用いて試料を励起する。さらにもう一方を非線形光学結晶により4.8 eVの4倍波へと変換し、これを電子顕微鏡へと入射する。光電効果により得られたパルス電子線を用いてSTEM測定を行うが、この際にSTEMのビーム制御系と、ピクセルカメラを接続することにより、図1(b)のように試料上の2次元の各点における回折像の空間マッピングを行うことが可能である。さらにパルス光による試料の励起と、パルス電子線の試料への到着タイミングを光学系中のディレイステージによって行うことで、時間分解測定を行うことで、回折像2次元、空間2次元、そして時間1次元の5次元データを取得する。このようにして取得された収束電子回折図形を詳細に解析することで、結晶中の歪みや磁場といった様々な物理量を、定量的に評価することができる。

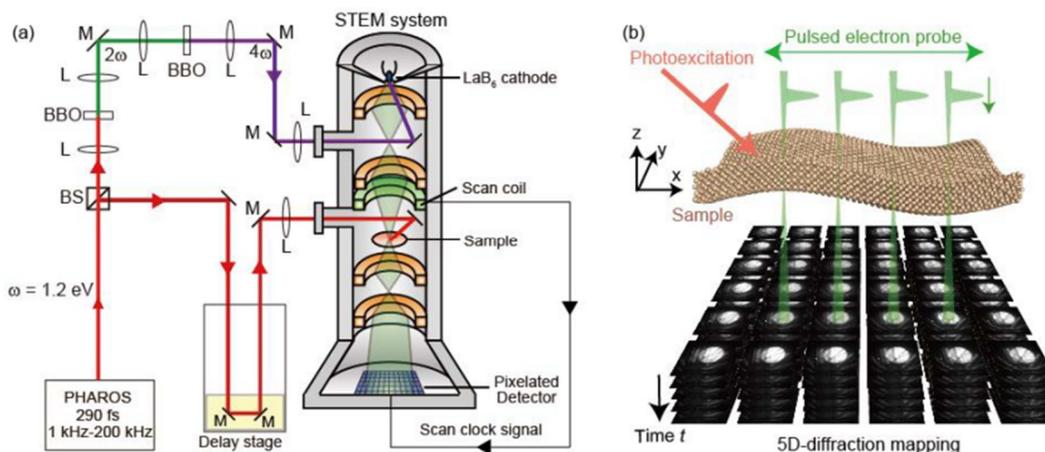


図1 (a) 5D-STEMのセットアップ。M, Lはミラーとレンズを示す。(b) 5D-STEMの模式図。[A. Nakamura et al., Faraday Discuss. 237, 27-39(2022).]

## (2) 5D-STEM による音響波・磁場の定量評価

開発した 5D-STEM を用いることにより、実際に試料中の歪みや磁場の時間変化の計測をデモンストレーションした。シリコン単結晶における収束電子回折法では、回折ピークの位置の変化を空間の各点において検出し、そこから結晶中の歪みを定量評価した。図 2(a)はシリコン上にタングステンのナノドットを蒸着した試料における歪みの時空間依存性である。光励起によりタングステンの温度が急激に上昇し、熱弾性によりシリコン中で歪みが伝わっている。このような歪みの時空間発展は、ナノスケールな音響波の伝搬であると考えられる。本研究ではさらに、得られた歪みの時空間発展に対してフーリエ変換による解析を行い、この音響波の分散関係を実験的に得るとともに、音速の異方性といった詳細な議論が 5D-STEM から可能であると示した。

磁場中を電子が通過した場合には、ローレンツ力によりその進行方向が変えられる。これにより、試料を透過した電子線の方向を回折像から検出することで、試料内の磁化の変化を捉えることができる(差分位相コントラスト法)。本研究ではこのような方法を用いることで、強磁性 FeNiPdP 試料における消磁過程を観測した。図 2(b)には、差分位相コントラスト法により計測された磁化の時空間発展を示す。光励起前には左右方向に向いた磁気ドメイン構造が、光励起直後にはほとんど消失し、消磁していることが分かる。その後数百ナノ秒後には、もともと存在していた磁気ドメインが回復している。このような歪みや磁場といった物理量の定量的な時空間マッピング測定は、これまで明視野像等による定性的な議論に留まっていた、既存の超高速時間分解電子顕微鏡を大きく超える測定手法である。

## (3) イットリウム鉄ガーネットにおける磁気音響結合

イットリウム鉄ガーネット(YIG)は代表的なスピントロニクス材料の一つであり、その磁気ドメインと歪みとの結合が盛んに研究されている。本研究では YIG を収束イオンビーム装置により加工することで、端にタングステンを蒸着した試料を用意した[図 2(c)]。ここへ 1.2 eV の光を照射した場合には、YIG は光を吸収せず、タングステンのみが熱される。これにより、YIG 内の還流磁区へとナノ音響波を入射し、ナノ音響波と磁気ドメインとの結合について詳細に調べることが可能となる。測定の結果、ナノ音響波は磁壁とはあまり強く結合しない一方で、磁気ボルテックスに到達した場合には磁気ドメイン構造を大きく変調することを見出した。このような特徴的な歪みと磁気ドメインの結合は、既存の磁歪とは異なるタイプの結合機構である可能性がある。今後その結合機構についてシミュレーション等を通して詳細に調べ、論文として発表したい。

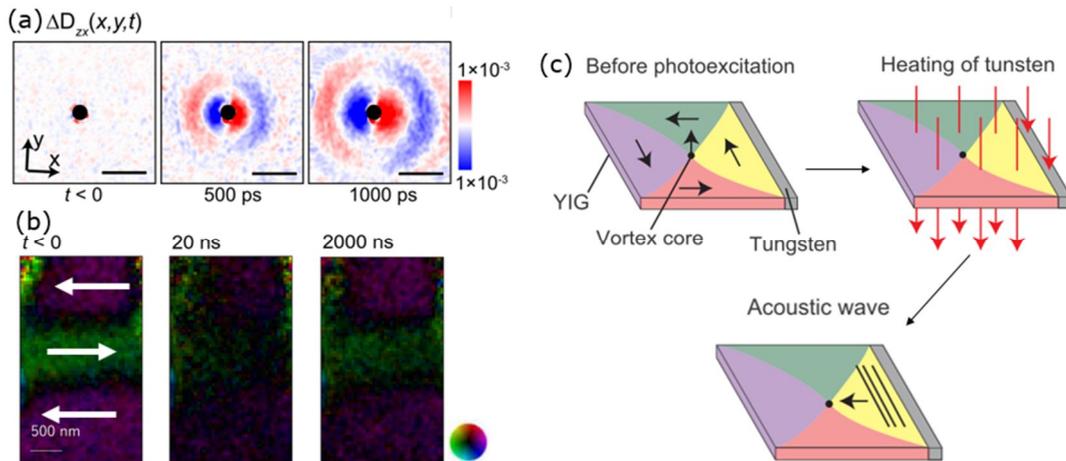


図 2 (a) 5D-STEM により計測されたシリコン薄片中の歪みの時空間発展。[T. Shimojima et al., Rev. Sci. Instrum. 94, 023705 (2023).] (b) FeNiPdP 試料における磁化の時空間発展。(c) YIG 試料における測定セットアップの模式図。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Nakamura A., Shimojima T., Ishizaka K.	4. 巻 237
2. 論文標題 Visualizing optically-induced strains by five-dimensional ultrafast electron microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Faraday Discussions	6. 最初と最後の頁 27～39
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/d2fd00062h	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 Shimojima T., Nakamura A., Ishizaka K.	4. 巻 94
2. 論文標題 Development of five-dimensional scanning transmission electron microscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 023705～023705
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0106517	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 Nakamura Asuka, Shimojima Takahiro, Ishizaka Kyoko	4. 巻 23
2. 論文標題 Characterizing an Optically Induced Sub-micrometer Gigahertz Acoustic Wave in a Silicon Thin Plate	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 2490～2495
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.nanolett.2c03938	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 Shimojima T, Nakamura A, Ishizaka K	4. 巻 72
2. 論文標題 Development and applications of ultrafast transmission electron microscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 287-298
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/jmicro/dfad021	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 Nakamura A., Shimojima T., Ishizaka K.	4. 巻 8
2. 論文標題 Finite-element simulation of photoinduced strain dynamics in silicon thin plates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Structural Dynamics	6. 最初と最後の頁 024103 - 024103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/4.0000059	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 Shimojima Takahiro, Nakamura Asuka, Yu Xiuzhen, Karube Kosuke, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori, Ishizaka Kyoko	4. 巻 7
2. 論文標題 Nano-to-micro spatiotemporal imaging of magnetic skyrmion 's life cycle	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabg1322
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abg1322	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 -

〔学会発表〕 計17件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Asuka Nakamura
2. 発表標題 Acoustically induced nonlocal magnetic domain dynamics in ferromagnet thin film revealed by ultrafast transmission electron microscopy
3. 学会等名 REIMEI-GIMRT workshop "Quantum Beams Study of the Dynamics of Rare Earth Garnets" (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 A. Nakamura, T. Shimojima, K. Ishizaka
2. 発表標題 Non-equilibrium phononic phenomena on nm x ps scale revealed by ultrafast transmission electron microscopy
3. 学会等名 APS March meeting 2024 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 中村飛鳥
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡で探るnm × ps 非平衡ダイナミクス
3. 学会等名 非平衡固体物性の最前線（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村飛鳥
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡によるnm × ps 非平衡結晶構造ダイナミクスの研究
3. 学会等名 レーザー加工若手研究会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村飛鳥, 千足勇介, 下志万貴博, Yajian Hu, 小川直毅, 中村文彦, 前野悦輝, 石坂香子
2. 発表標題 ピコ秒光音響波に誘起されたCa <sub>2</sub> RuO <sub>4</sub> の非線形結晶構造変化
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村飛鳥, 千足勇介, 下志万貴博, 田中佑磨, 坂野昌人, 増淵寛, 町田友樹, 渡邊賢司, 谷口尚, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡によるツイスト2層WSe <sub>2</sub> の結晶構造ダイナミクスの研究
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 下志万 貴博, 中村 飛鳥, 于 秀珍, 軽部 皓介, 田口 康二郎, 十倉 好紀, 石坂 香子
2. 発表標題 高速時間分解電子顕微鏡による光駆動磁気刃状転移ダイナミクスの観測
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Asuka Nakamura
2. 発表標題 Revealing Non-equilibrium Phononic Phenomena on nm × ps Scale revealed by Ultrafast Transmission Electron Microscopy
3. 学会等名 The Ninth NYCU & RIKEN Symposium on Physical and Chemical Sciences (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村飛鳥, 千足勇介, 下志万貴博, 田中佑磨, 坂野昌人, 増淵寛, 町田友樹, 渡邊賢司, 谷口尚, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡によるツイスト2層WSe <sub>2</sub> の超高速格子ダイナミクスの研究
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 千足勇介, 中村飛鳥, 下志万貴博, 古賀淳平, 矢野力三, 笹川崇男, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子回折とシミュレーションによる超イオン導電体AgCrSe <sub>2</sub> の散漫散乱の研究
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村飛鳥, 下志万貴博, 石坂香子
2. 発表標題 nm x ps分解能5次元走査型透過電子顕微鏡による格子変形の定量評価
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 下志万貴博, 中村飛鳥, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡における5次元STEM法の開発と応用
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村飛鳥, 下志万貴博, J. Beltz, K. Volz, U. Hofer, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡を用いたGaP/Si界面におけるピコ秒音響波の観測
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 千足勇介, 中村飛鳥, 下志万貴博, 中村文彦, 前野悦輝, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡によるCa <sub>2</sub> RuO <sub>4</sub> の光誘起音響フォノンの研究
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 古賀淳平, 千足勇介, 中村飛鳥, 秋葉智起, 高橋英史, 下志万貴博, 石渡晋太郎, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子回折を用いたTaTe2の光誘起相転移の研究
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村飛鳥, 下志万貴博, 石坂香子
2. 発表標題 nm x ps分解能5D-STEMによる歪みの定量評価
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 下志万貴博, 中村飛鳥, 石坂香子
2. 発表標題 超高速時間分解電子顕微鏡における5次元STEM法の開発と応用
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 5次元電子顕微鏡及びその解析方法	発明者 下志万貴博, 中村飛鳥, 石坂香子	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、09308-JP	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
---------	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------