

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 10 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26286014

研究課題名(和文)電子らせんビームをもちいた磁気イメージングの研究

研究課題名(英文)Studies of magnetic imaging using electron vortex beams

研究代表者

齋藤 晃 (Saitoh, Koh)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

研究者番号：50292280

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、電子線の新しい伝播モードである「電子らせん波」をもちいた磁性イメージング手法の開発および磁性との相互作用の解明を目的として、おもに軌道角運動量をもつビームの生成および伝播特性、位相イメージング法の開発に関する研究を行い、以下の成果を得た。1) 超高圧電子顕微鏡を利用した1000keVの電子らせん波の生成、2) フォーク型回折格子をもちいた新しい位相回復法の開発、3) 軌道角運動量をもつ非回折電子ビームの生成およびベッセルビームの自己修復性の実験的検証、4) ダンマン渦回折格子をもちいた軌道角運動量計測法の開発、5) 電子らせんビームによるスキルミオン生成・消滅の実験的検証。

研究成果の概要(英文)：The present study is aimed to develop a new magnetic imaging technique using electron vortex beams, the new propagation mode of electron beams, and to reveal the interaction between electron vortex beams and magnetic materials and magnetic fields. This study is focused mainly on the generation of electron beams carrying orbital angular momenta and their propagation properties, a new phase imaging technique using electron vortex beams. The following studies have been carried out. 1) Generation of electron vortex beams at a high beam energy of 1000keV using a high-voltage reaction science microscope. 2) Development of an electron diffractive imaging technique using fork-shaped gratings. 3) Generation of nondiffracting electron beams carrying orbital angular momentum. 4) Measuring orbital angular momentum using Danmann vortex gratings. 5) Experimental verification of the creation and annihilation of Skyrmions using electron vortex beams

研究分野：電子線物理学

キーワード：電子顕微鏡 らせん波 磁性 軌道角運動量 ボルテックス

### 1. 研究開始当初の背景

2010年の内田・外村らによる軌道角運動量をもつ電子ビームの発見を契機に、軌道角運動量をもつ電子ビーム、すなわち、らせん状の波面をもつ電子ビーム「電子らせんビーム」の物理的性質および物質との相互作用に関する研究が世界中で精力的に進められ、まもなく磁気円二色性が見出された。われわれのグループも平成23~25年度までの科研費等の研究により、1)大きな軌道角運動量 ( $m = 90h$ ) をもつ電子らせん波の生成、2)電子らせん波の干渉性、3)電子らせん波の軌道角運動量の計測法の開発など電子らせん波の重要な物理的性質の解明に貢献してきた。

現在まで、電子らせん波の伝播特性や干渉性など、ビーム自身の物理的な性質については多くのことが明らかになっている。しかし、電子らせんビームと物質との相互作用やそれを利用した材料のイメージングへの応用研究についてはまだあまり研究が進められておらず、今後の緊急課題となっている。

電子らせんビームは、粒子描像ではらせん軌道を描いて進行する電子線であり、荷電粒子の公転運動による磁気モーメントをもつ。現在までに  $m = 100h$  を超える大きな軌道角運動量をもつ電子らせん波の生成が実現しており、このような大きな磁気モーメントをもつ電子らせんビームを走査透過電子顕微鏡法(STEM)のプロブとしてもちいることで、これまで電子顕微鏡でほとんど検出できず利用されてこなかった電子線の磁気散乱をもちいた新しい磁性イメージングの可能性が示唆される。

また電子ビームの軌道角運動量の計測法については、フォーク型回折格子、多角形絞り、ピンホール、ナイフエッジをもちいる方法等種々の方法が開発されており、磁性体試料等による軌道角運動量移送をマッピングする新しい磁気ドメインイメージングの可能性が示唆されている。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、電子線の新しい伝播モードである「電子らせん波」をもちいた磁性イメージング手法の開発および磁性との相互作用の解明のため、1) 超高压電子顕微鏡を利用した1000keVの電子らせん波の生成、2) フォーク型回折格子をもちいた位相回復、3) 軌道角運動量をもつ非回折電子ビームの生成、4) ダンマン渦回折格子をもちいた軌道角運動量計測法の開発、5) 電子らせんビームによるスキルミオン生成・消滅の実験的検証を行った。

### 3. 研究の方法

1) 超高压電子顕微鏡を利用した1000keVの電子らせん波の生成

厚さ50nmの $\text{Si}_3\text{N}_4$ 膜の両面にマグネトロンスパッタリング装置でPtを $1\mu\text{m}$ ずつ堆積した後、FIB装置をもちいた切削加工により

フォーク型回折格子を作製した。フォーク型回折格子の形状は計算機プログラムにより設計し、画像データとしてFIB装置に入力した。フォーク型回折格子のバーガースペクトルを $b = 1, 3, 5, 10$ とした。回折格子の直径は $15\mu\text{m}$ とした。回折格子の開口部と遮蔽部の幅は全て1:1とした。

作製したフォーク型回折格子を、 $\text{LaB}_6$ 熱電子銃を備えた超高压電子顕微鏡JEM-1000RSの試料室に導入し、回折面に形成される電子らせんビームのビーム径を計測した。超高压電子顕微鏡の加速電圧は1000kVとし、電子らせんビームの記録にはCCDをもちいた。同様の実験を、電界放出型電子銃を搭載した加速電圧200kVの電子顕微鏡でも行い、ビーム径を比較した。

2) フォーク型回折格子をもちいた位相回復

電子回折顕微法による位相回復の精度向上を目指し、照射する電子線に構造をもたせた新しい方法の開発を行った。通常の電子回折顕微法では対物レンズの像面に丸孔絞りを導入し、実空間拘束条件とするが、本研究では、丸孔絞りの代わりに、フォーク型回折格子を導入し、構造をもつ電子線照射を実効的に実現し、位相回復精度がどのように変化するか検討した。

丸孔絞り、回折格子の作製は、上記1)に記された手順で金属膜を作製した後、FIBにより切削加工を行った。絞りの直径は $5\mu\text{m}$ とした。作製した絞りは透過型電子顕微鏡の制限視野絞り位置に設置した。試料を作製した絞りで選択し、像および回折図形を観察した。回折図形の強度および回折格子形状を拘束条件として回折顕微法を行った。

回折図形の取得にはエネルギーフィルターを備えたガタンイメージングフィルター(GIF)をエネルギー選択幅10eVとしてもちいた。反復位相回復アルゴリズムは、Fineupにより提案されているものをもちいた。

3) 軌道角運動量をもつ非回折電子ビームの生成

非回折性をもち軌道角運動量を有する電子ビームである電子ベッセルビームおよび電子離散非回折ビームを生成するために、円環スリット、多角形スリットおよび回転対称ピンホールを電子顕微鏡に導入し、レンズ条件を調整することにより非回折性をもつビームの生成およびその伝播過程の観察を行った。

円環スリット、多角形スリット、回転対称ピンホールの穴絞り、回折格子の作製は、上記1)に記された手順と同様である。スリット幅およびピンホールの直径は $1\mu\text{m}$ とし、半径 $2\mu\text{m}$ の円周上に位置するように作製した。

作製したピンホールマスクを透過型電子顕微鏡に導入し、各電子線マスクを透過後の電子波の伝播過程を観察した。加速電圧は200kVとした。

4) ダンマン渦回折格子をもちいた軌道角運動量計測法の開発

フォーク型回折格子をもちいた軌道角運動量計測法では、高次の回折波の強度が弱いため、計測できる軌道角運動量の大きさが小さいものに限られていた。この問題点を解決するために、高次の回折波まで強度が変わらないダンマン回折格子と呼ばれる回折格子を作製し、広い軌道角運動量範囲での計測の可能にする。

ダンマン渦回折格子の作製は他の回折格子と同様である。回折格子全体の直径は  $15\mu$  とした。作製した回折格子を透過電子顕微鏡の試料位置および制限視野絞り位置に導入し、その回折図形を観察した。加速電圧は  $200\text{kV}$  とした。

5) 電子らせんビームによるスキルミオン生成・消滅の実験的検証

低温でスキルミオン状態を形成する FeGe に対して電子らせんビームの局所磁場をもちいたスキルミオンの生成・消滅およびマニピュレーションの可能性について検証する。

収束レンズ絞りの位置に導入したフォーク型回折格子をもちいて試料面に電子らせん波を生成し、試料に照射する。試料は液体窒素温度に冷却し、磁場の印加は電子顕微鏡の対物レンズを利用する。スキルミオン相が形成する磁場よりもわずかに弱い磁場に調整し、電子らせん波の照射によりスキルミオンが形成されるか観察する。

4. 研究成果

1) 超高压電子顕微鏡を利用した  $1\text{MeV}$  の電子らせん波の生成

図 1 (a), (b), (c) および (d) は、それぞれ FIB で切削加工したバーガースペクトル  $b = 1, 3, 5$  および  $10$  のフォーク型回折格子の SIM 像である。分岐部分の形状および開口部と遮蔽部の幅の比など、計算機プログラムでデザインした通りの形状に加工することができた。

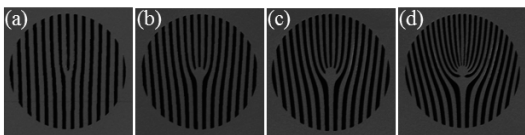


図 1 FIB により作製したフォーク型回折格子

図 2 (a), (b), (c) および (d) は、各回折格子を超高压電子顕微鏡の試料位置に導入して得た電子回折図形であり、図 2 (e), (f), (g) および (h) は、それぞれ図 2 (a), (b), (c) および (d) の中央部分を拡大して示したものである。中央に透過波によるピーク、その左右に回折波によるピークがみられる。 $b = 3, 5, 10$  の場合、回折ピークの中央にらせん波であることを示唆する暗点がみられる。 $b = 1$  では暗点が明瞭にみられない。

図 3 (a), (b), (c) および (d) はそれぞれ  $200\text{kV}$

の電子顕微鏡をもちいて同じ回折格子から得た回折図形である。 $200\text{kV}$  および  $1000\text{kV}$  の電子線を得た回折図形の比較から、 $1000\text{kV}$  の電子線で生成した電子渦ビームの直径は、 $200\text{kV}$  の電子線で生成した電子渦ビームの直径の約  $1/2.4$  倍に縮小することが判明した。波長比から期待される値 ( $1/2.9$ ) と比べて小さくなった理由は、超高压電子顕微鏡の電子銃である  $\text{LaB}_6$  熱電子銃の仮想光源の大きさによる回折図形のぼけのためと考えられる。

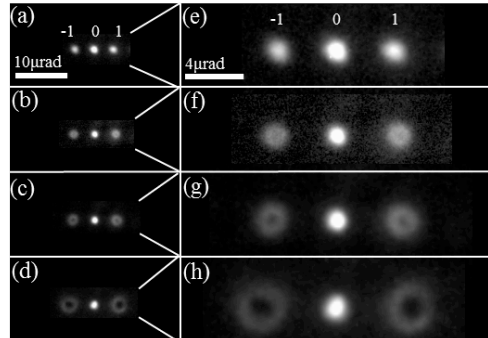


図 2 反応科学超高压電子顕微鏡をもちいて得た回折図形

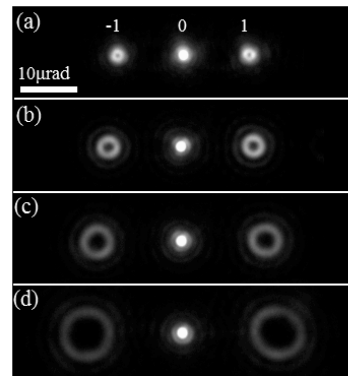


図 3 加速電圧  $200\text{kV}$  の電界放出型電子顕微鏡をもちいて得た回折図形。

2) フォーク型回折格子をもちいた電子回折顕微鏡法

図 4 (a), (b) および (c) はそれぞれ作製したフォーク型回折格子、通常回折格子、丸穴の SIM 像である。図 4 (a) は試料としてもちいた Au ナノプレートの TEM 像である。図 4 (b), (c) および (d) はそれぞれフォーク型回折格子、通常回折格子および丸孔で試料を選択し、フーリエ反復位相回復により得た位相像である。フォーク型回折格子を用いた場合、試料と膜の境界および試料内での滑らかな位相変化等が正しく再現されていることがわかる。通常回折格子および丸孔では、TEM 像には見られないような位相の不連続な変化が見られる。ノイズを含めた仮想データによる位相回復シミュレーションにより、各回折格子の位相回復精度を調べた結果、フォーク型回折格子の位相回復精度が他の絞りの場合に比べて高いことがわかった。その理由はフォーク型回折格子の低い対称性、構造の複雑さによるものと考えられる。

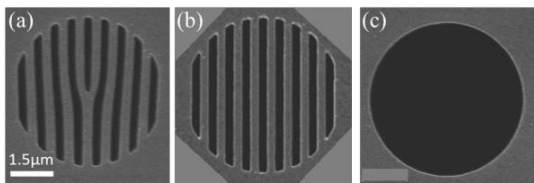


図4 作製した回折格子および丸孔絞り

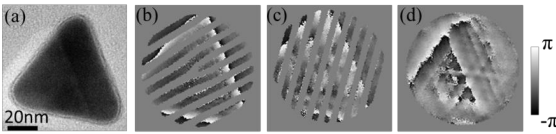


図5 試料の像と位相回復結果

### 3) 軌道角運動量をもつ非回折電子ビームの生成

図 6(a), (b), (c)および(d)は、それぞれ FIB で切削加工した  $n$  回回転対称ピンホールマスク ( $n = 5, 7, 9, 10$ ) の SIM 像である。

図 7(a), (b), (c)および(d)は、それぞれ各ピンホールを通過した電子波による回折図形である。各ピンホールを通過した電子波は回折して互いに重なり合い、干渉パターンを形成した。干渉パターンは、各ピンホールの回転対称性を反映して、それぞれ 5, 7, 9, 10 回回転対称性を示している。位相回復の結果、干渉パターン中の暗点は位相特異点であることが確認された。

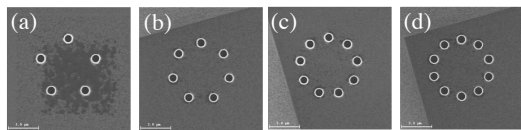


図6 作製した回転対称ピンホール。(a)5 回対称、(b)7 回対称、(c)9 回対称、(d)10 回対称。

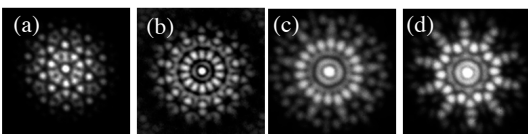


図7 作製した回転対称ピンホール。(a)5 回対称、(b)7 回対称、(c)9 回対称、(d)10 回対称。

図 8(a), (b)および(c)は作製した円環スリット、正 5 角形スリットおよび正 6 角形スリットの TEM 像である。図 9(a), (b)および(c)は図 8(a), (b)および(c)により得られた回折図形である。TEM 像において FIB で削っていない部分の強度を 0 とする実空間拘束条件を与え、スリットの形状と回折図形の強度をもちいて、回折顕微鏡法を利用して位相回復を行った。図 10(a), (b)および(c)は回復した位相分布である。図 10(b)の位相分布には、赤丸および青丸で示すような位相特異点がみられる。このような位相特異点は正六角形スリットの場合では見られなかった。

波動伝播シミュレーションにより、多角形の奇数の場合には位相特異点が形成され、偶

数の場合には位相特異点が形成されないことが確かめられた。この特徴は回転対称ピンホールの場合にも確かめられた。

図 11(a), (b), (c)および(d)は、伝播シミュレーションで得た振幅分布の  $xz$  断面である。ピンホールにより生成されるビームは極めて高い非回折性を示すことが確かめられた。回転対称スリットの場合、非回折性は  $n$  の値とともに増大し、円環スリットの非回折性に近づいて行く傾向がみられた。

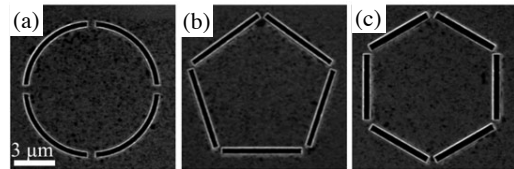


図8 作製した回転対称スリット。(a)円環、(b)正 5 角形、(c)正 6 角形。

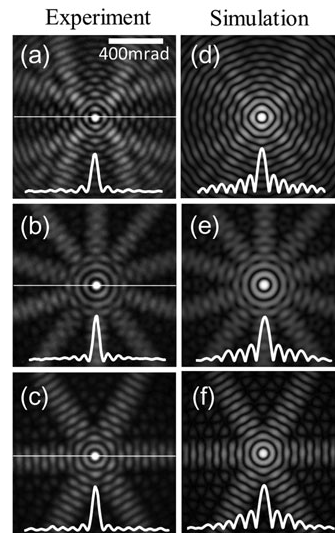


図9 図8の回転対称スリットをもちいて生成した電子ビームの断面強度分布。(a)(d) 円環、(b)(e) 正 5 角形、(c)(f) 正 6 角形。

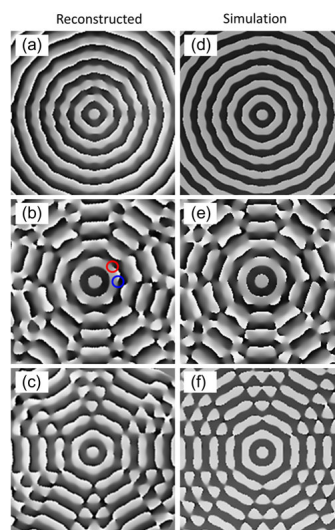


図10 図9の強度分布にもとづき位相回復した結果。(a)(d) 円環、(b)(e) 正 5 角形、(c)(f) 正 6 角形。

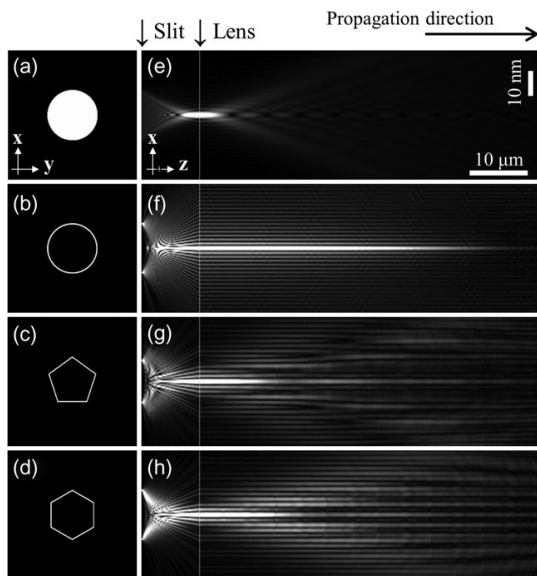


図 11 伝播シミュレーションで得た振幅分布の  $xz$  断面。(a)(e)円孔、(b)(f) 円環スリット、(c)(g) 五角形スリット、(d)(h) 六角形スリット。

#### 4) ダンマン渦回折格子をもちいた軌道角運動量計測法の開発

図 12 (a)は作製したダンマン渦回折格子の TEM 像である。図 12(b)はダンマン渦回折格子をもちいて得た電子回折図形である。透過スポットを除くと、(-2,-2) から(2,2)までの回折強度が同程度となっており、また3次以上の回折波の強度が極めて弱く、設計通りの強度分布になっている。また、各回折スポットがリング状となっており、電子らせん波が生成されていることが示唆される。今後、この回折格子をもちいた軌道角運動量計測をすすめる予定である。

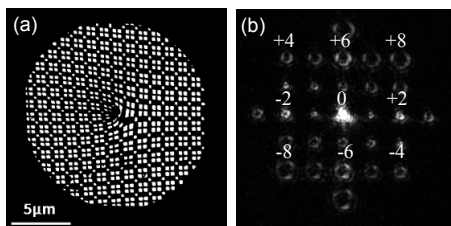


図 12 伝播シミュレーションで得た振幅分布の  $xz$  断面。(a)円孔、(b)7 回対称、(c) 9 回対称、(d) 10 回対称。

#### 5) 電子らせんビームによるスキルミオン生成・消滅の実験的検証

収束絞り位置に導入したフォーク型回折格子およびスパイラルゾーンプレートをもちいて、試料位置に電子らせん波を生成した。試料に磁場を印加することができないため、対物レンズの磁場を切り、低倍観察モードで実験を行った。対物レンズの磁場を少しずつ印加すると、らせん磁性相およびスキルミオン相が形成されることを確認した後、対物レンズの磁場をわずかに弱めてスキルミオン相を消失させ、電子らせんビームを照射した。試料上でのビームの直径は約  $1\mu\text{m}$  であつ

た。試料上の照射位置、印加磁場の大きさ、軌道角運動量の大きさを変えながら、実験を繰り返したが、スキルミオンの生成は観察されなかった。

スキルミオンが生成されなかった理由は、今回もちいた  $1\mu\text{m}$  の電子らせんビームでは中心付近に生じる磁場の大きさは極めて小さくスキルミオンを生成させるために十分な磁場が印加されなかったためと思われる。

#### 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 15 件)

1. H. Nambu, Y. Noguchi, K. Saitoh, M. Uchida, "Nearly nondiffracting electron lattice beams generated by polygonal slits", *Microscopy* (2017) DOI: 10.1093/jmicro/dfx020.
2. H. Nambu, K. Saitoh, M. Uchida, "Electron Diffractive imaging using Fork-Shaped Grating Masks", *AMTC Letters*, 5, 248-249, (2016).
3. 齋藤晃、内田正哉、「軌道角運動量をもつ電子ビーム」、*日本結晶学会誌* 58, 79-84, (2016).
4. K. Saitoh, K. Hirakawa, H. Nambu, N. Tanaka and M. Uchida, "Generation of Electron Bessel Beams with Nondiffractive Spreading by a Nanofabricated Annular Slit", *Journal of the Physical Society of Japan*, 85, 043501-4, (2016). DOI 10.7566/JPSJ.85.043501.

[学会発表] (計 47 件)

1. 齋藤晃「渦電子線の生成と利用」、SPRING-8 ユーザーコミュニティ (SPRUC) 研究会、2017 年 3 月 16 日、関西学院大学梅田キャンパス、大阪
2. H. Nambu, K. Saitoh, M. Uchida, "Electron Diffractive imaging using Fork-Shaped Grating Masks", *The 5th International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations*, 2016, 11-13 May, the WINK Aichi, Nagoya, Japan
3. 齋藤晃、「軌道角運動量をもつ電子ビームの現状」、日本顕微鏡学会 様々なイメージング技術研究部会 第 4 回 研究会、2016 年 11 月 20、21 日、埼玉県、ホテル紫雲閣・日立製作所基礎研究センター
4. 野口雄紀、南部裕紀、齋藤晃、内田正哉、「非回折性をもつ電子ボルテックスビームの生成」、*日本物理学会 2016 年秋季大会*、2016 年 9 月 13 日～16 日、金沢大学角間キャンパス
5. K. Saitoh, H. Nambu, M. Uchida, "Electron Diffractive Imaging Using Fork-Shaped Grating Masks", *The 16th European*

- Microscopy Congress, 2016, 28 Aug. through 2 Sep., Lyon, France
6. 齋藤晃、南部裕紀、内田正哉、「フォーク型回折格子をもちいた収束電子らせん波の形成」、日本顕微鏡学会第72回学術講演会、2016年6月14日～16日、仙台国際センター
  7. 齋藤晃、南部裕紀、内田正哉、「フォーク型回折格子をもちいた電子回折顕微法の位相再生精度」、日本顕微鏡学会第72回学術講演会、2016年6月14日～16日、仙台国際センター
  8. H. Nambu, K. Saitoh, N. Tanaka, and M. Uchida, "Diffractive Imaging of a Two-fold Astigmatism of a Magnetic Lens Using Forked Grating Masks", International Symposium on EcoTopia Science 2015, 27-29 Nov. 2015, Nagoya.
  9. K. Saitoh, H. Nambu, N. Tanaka, "Propagation Properties of Electron Vortex Beams", Microscopy and Microanalysis 2015 Meeting, 2-6 Aug. 2015, Portland, USA. (招待)
  10. 齋藤晃、「電子らせん波を学ぶ」、第31回分析電子顕微鏡討論会、幕張メッセ国際会議場国際会議室、2015年9月1日
  11. 齋藤晃、「軌道角運動量を持った電子波を利用した電子顕微鏡」、日本物理学会2015年秋季大会、2015年9月16日～19日、関西大学 千里山キャンパス (招待)
  12. 南部裕紀、齋藤晃、田中信夫、「フォーク型回折格子をもちいたフーリエ反復位相回復」、日本顕微鏡学会 第71回学術講演会、2015年5月13日～15日、国立京都国際会館
  13. 齋藤晃、内田正哉、「電子らせん波の物理現象」、4日本顕微鏡学会第71回学術講演会、2015年5月13日～15日、国立京都国際会館
  14. 南部裕紀、齋藤晃、田中信夫、内田正哉、「回折顕微法による電子らせん波の位相回復および磁場イメージング」、日本物理学会第70回年次大会、2015年3月23日、早稲田大学早稲田キャンパス。
  15. 齋藤晃、長谷川裕也、平川和馬、田中信夫、内田正哉、「電子ボルテックスビームの生成および伝播」、日本顕微鏡学会第70回学術講演会、2014年5月11日～13日、幕張メッセ国際会議場 (招待)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 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：

番号：2017-004774

出願年月日：平成29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

権利者：名古屋大学

種類：

番号：WO2016/056425

出願年月日：平成28年4月14日

国内外の別：国内

○取得状況 (計 1 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

齋藤 晃 (SAITOH, Koh)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

研究者番号：50292280

(2)研究分担者

内田 正哉 (UCHIDA, Masaya)

埼玉工業大学・先端科学研究所・教授

研究者番号：80462662