

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 4 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14117

研究課題名(和文) 時間分解電子波干渉の実現とスキルミオンダイナミクスへの応用

研究課題名(英文) Development of time-resolved transmission electron microscopy using highly coherent pulsed electron beams for observation of magnetic skyrmion motion

研究代表者

石田 高史 (Ishida, Takafumi)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

研究者番号：60766525

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：磁気スキルミオンに代表される微細な磁気構造の動的観察に向けてフォトカソード型の電子銃から放出されるパルス電子線を用いた時間分解電子顕微鏡法の確立を目指した。サブマイクロ秒での高強度パルス電子線の生成に成功し、これをダイレクト電子検出器により同期検出することにより高い信号対雑音比でのシングルショットイメージングを実現した。さらに、高速電子線偏向器とシングルショットイメージングを組み合わせることで磁気構造の動的変化のような非可逆過程を観察可能な連続時間分解撮影法を確立し、500ns 間隔での像撮影に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で確立した連続で撮影可能な時間分解電子顕微鏡法により超高速で発現する磁気スキルミオンの可視化が期待できる。また、この手法はスキルミオンダイナミクスの観察のみならず低ドーズ観察が要求される生体試料の観察やガスや液体中でのその場観察にも転用可能である。そのため、本技術の確立は電子顕微鏡を用いた生物系・その場観察分野での貢献も期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to observe motion of fine magnetic structures such as magnetic skyrmions, a method of time-resolved observation by a pulsed electron beam with a photocathode type electron gun and a direct electron detector was developed in a low-voltage transmission electron microscope. We have succeeded in generating sub-micro second pulsed electron beams at high intensity. In addition, we have realized single-shot imaging at high signal-to-noise ratio using synchronous measurement. A time-resolved transmission electron microscopy with continuous image acquisition at 500 ns interval was established by using high-speed deflector.

研究分野：電子顕微鏡法

キーワード：時間分解電子顕微鏡法 シングルショットイメージング ダイレクト電子検出器

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

膨大な量の情報を取り扱う現代において、磁気記録媒体の高密度化・省電力化が求められている。この要求に応える磁気構造の一つとして、磁性体中で現れる渦状かつ粒子的な磁気構造体である磁気スキルミオンがあげられる。当初は特異な磁気構造が発見された当時は低温でしか磁性体中で発現しなかったが、近年続々と常温スキルミオンが発見されておりデバイス化の機運が高まっている。デバイス化に向けては生成・消去・駆動に代表されるダイナミクスへの理解が重要であり、このダイナミクスを実空間で直接観察し評価することによりスキルミオンの制御への新たな知見が期待できる。一方でこのようなダイナミクスはそのほとんどが高速現象であるため、その実空間観察は容易ではない。

磁気スキルミオンはローレンツ電子顕微鏡法により実空間観察に成功した。このようにナノレベルの空間分解能が達成できる電子顕微鏡によるスキルミオン観察は、そのダイナミクスの観察についても有効な手段であるといえる。しかしながら、上記の高速現象を可視化する手法は十分に確立されておらず、より高い空間分解能で磁気構造を観察するためには電子波の干渉性を利用した時間分解電子顕微鏡法の開発が必要である。このような開発は微細磁気構造のダイナミクスの解明に対し大きな意義を有している。

### 2. 研究の目的

従来の透過電子顕微鏡(TEM)で実現されてこなかった磁気スキルミオンに代表される磁気構造の超高速ダイナミクスを直接可視化できる手法の確立が必要とされる。レーザーで駆動する負の電子親和性表面処理された半導体フォトカソード電子源を用いることで、電子波が干渉するために必要な高い空間コヒーレンスと時間分解に必要な電子線のパルス化を両立することができる。さらに、ダイレクト電子検出器によりパルス電子線を用いたイメージングを行えば時間分解能の向上も期待できる。本研究では、半導体フォトカソード電子源を搭載した透過電子顕微鏡にダイレクト電子検出器を取り付け、さらに高速電子線偏向器を導入することにより磁気構造のダイナミクスを観察可能な時間分解電子顕微鏡法の確立を目的とした。

### 3. 研究の方法

半導体フォトカソードを搭載した透過電子顕微鏡であるスピン偏極パルス透過電子顕微鏡(SP-TEM)において高強度かつサブマイクロ秒でのパルス電子線生成にむけたパルス光学系を構築する。パルス電子線生成機構の構築後に Silicon-On-Insulator (SOI) 技術を用いた CMOS センサーである SOI ピクセル検出器をダイレクト電子検出器として導入してシングルショットイメージングを行い、シングルショットイメージングにおける像の信号対雑音比について調べる。これと並行して高速電子線偏向器を開発し、偏向器に対して直流の高電圧印加し動作試験を行う。その後ダイレクト電子検出器と高速電子線偏向器をもちいてシングルショットイメージングを行うことで非可逆過程の観察可能な連続時間分解撮影法がサブマイクロ秒で実現できること確認する。さらなる時間分解能向上に向け画像処理による像の信号対雑音比の回復についての検討を行う。また観察試料である磁性体の薄膜試料の作成の最適化を行う。

### 4. 研究成果

#### (1) サブマイクロ秒パルス電子線の生成

SP-TEM は電子銃に半導体フォトカソードをもちいているため、半導体フォトカソードにパルス光を照射することでパルス電子線を生成することができる。高強度かつナノ秒のパルス幅をもつ電子線生成可能な光学系の構築とパルス光・電子線の強度について評価を行った。図1はパルス電子線の生成のためにパルス光を発生させる光学系の模式図である。高強度連続レーザー光を発生可能なチタンサファイアレーザーに電気光学変調素子を導入し、任意のパルス幅かつ連続でパルス光の生成を実現した。ここで、電子線およびレーザーのパルス幅は使用したポッケルスセルとそのドライバーの性能に制限され、最小で 50 ns であった。図2に SP-TEM 内に設置されたファラデーカップで測定したパルス電子線の電流値と半導体フォトカソードに入射させたパルス光の強度との関係を示す。電子線の電流値は半導体フォトカソードに入射させたパルス光の強度に比例することが確認できる。このように本光学系によりシングルショットイメージングのために必要となる高強度パルス電子線の生成が可能であることがわかった。

#### (2) ダイレクト電子検出器を用いた高感度シングルショットイメージング

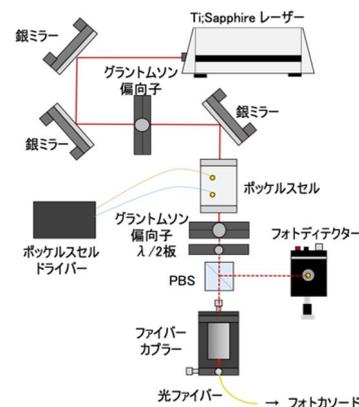


図1 構築したパルス光学系

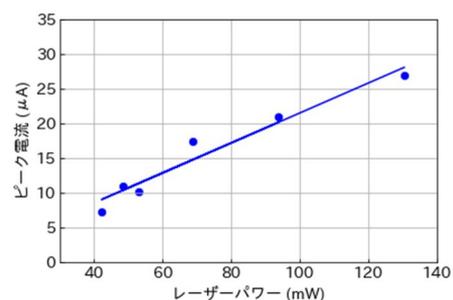


図2 パルス光とパルス電子線の強度

一つのパルス電子線を結像にもちいるシングルショットイメージングはナノスケールかつ非可逆的な高速現象の撮影が可能手法である。シングルショットイメージングではより高い時間分解能を達成するには高密度なパルス電子線に加えて、それを高感度・高効率に検出することが要求される。そこで直接型の電子検出器である SOI ピクセル検出器を SP-TEM に搭載しサブマイクロ秒シングルショットイメージングを行った。

図3にSOIピクセル検出器で取得した像から求めた信号対雑音比(SNR)のパルス幅依存性を示す。100 ns - 2  $\mu$ s のパルス幅のパルス電子線をもちいてSOIピクセル検出器により穴があいたカーボン膜の像(図3 挿入図)を撮影し、取得した像の真空領域からSNRを求めた。55 nm / pixel の倍率においてパルス幅1  $\mu$ s でRoseの条件(SNR > 5)を満たし、サブマイクロ秒でシングルショットイメージングが行えることがわかった。さらに上記の結果から検出器の平均出力を算出し、ショットノイズが支配的となる場合のSOI検出器でのSNRを見積もった結果、Rose条件下では時間分解能は約300 nsが達成可能であることも明らかとなった。すなわち熱雑音の低減に向けた冷却機構の導入により時間分解能を向上が見込まれる。

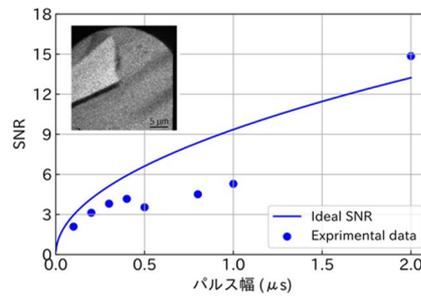


図3 シングルショット像のSNR

(3) 時間分解連続観察に向けた高速電子線偏向器の開発  
従来のシングルショットイメージングにおいても観察対象の経時的な変化の撮影はその現象が高速であればあるほど困難を極める。これは連続撮影ではカメラのフレームレートに時間分解能が律速されてしまうからである。そこで検出器のフレームレートを越えた連続撮影を行うため、高速電子線偏向器の開発をした。高速電子線偏向器とパルス電子線列を同期できれば検出器面上に時間分解された複数枚の像が投影可能となる。図4に示すようにSP-TEMの蛍光板上部に開発した高速電子線偏向器を挿入した。電圧印加試験を行い、電子線の偏向量は当初の設計のとおり検出器面上で0.03 mm/Vとなった。また、電極間に200 Vまでの電圧印可を行い30 keVの電子線の偏向に十分な性能をもつことがわかった。



図4 SP-TEMの蛍光板上部に配置された高速電子線偏向器

また、これまでに作製した光学系や検出システムによりパルス電子線列と電子線偏向器、SOI検出器を同期させシングルショットイメージングによる連続撮影を行った。露光時間2  $\mu$ sの1フレームの中に、2つのパルス電子線(パルス幅:500 ns)からなるパルス列をもちいてCuメッシュ像を撮影した。図5(a)はパルス列と偏向器の同期をずらし撮影した結果である。この場合、検出器上の同一領域に2つのパルスによる像が撮影される。そのため時間分解連続撮影はできていない。一方、パルス電子線と偏向器に印可する電圧のタイミングを一致させることで、2つの連続するパルス電子線による像をそれぞれ別の領域に投影できた(図5(b))。このようにSP-TEMにおける連続時間分解撮影手法を確立することに成功し、磁気ダイナミクスの観察が可能となった。

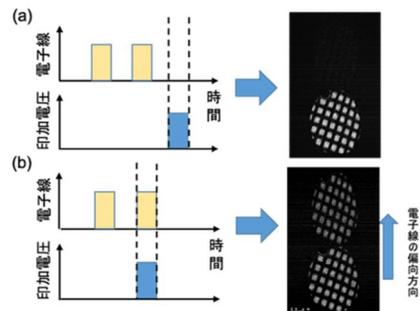


図5 電子線偏向器を用いた連続時間分解撮影の結果

(4) 電子線ホログラフィへの応用に向けた低ドーズホログラムの評価

時間分解電子顕微鏡法においてパルス電子線のパルス幅とその中に含まれる電子数はトレードオフの関係にある。そのため、高感度に電子を検出できたとしても有効な議論ができるデータとなるとは言えない。そこで近年成長著しい画像復元技術を用いて低線量像の復元の検討を行った。図6はPoissonノ

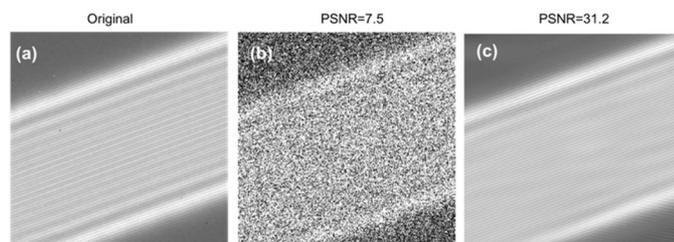


図6 Poisson ノンローカル PCA 法を用いた画像復元

ローカル PCA と呼ばれる手法[1]で画像復元を試みた結果の一例である。実験で取得した十分に SNR が確保されたホログラム(図 6(a))に 1 ピクセルあたり平均 4 電子検出されるようにショットノイズを加え(図 6(b))、復元を施した(図 6(c))。干渉領域以外にもフリンジが確認できるためその像への解釈には注意が必要であるが、画像処理を用いることでノイズに埋もれていた干渉縞の再生できた。画像復元技術をもちいて低線量像の像質改善ができることがわかり、電子線ホログラフィーについても非可逆過程の観察が期待できることがわかった。

#### 今後の展望

本研究で開発された半導体フォトカソード型電子銃を搭載した透過電子顕微鏡とダイレクト電子検出器、高速電子線偏向器による連続時間分解撮影法は、磁気スキルミオンに代表される磁気構造ダイナミクスの観察に適した手法になると予想される。一方で試料作製についても透過電子顕微鏡をもちいる制約上、電子線が透過するまで薄片化した必要である。現在の合金を薄膜化することで広く発現する磁気スキルミオンは冷却イオンミリング法を用いることで試料へのダメージを減らし薄片化可能であることもわかっている[2]。また本研究で開発された技術や得られた知見を活用することで、ナノスケールかつナノ秒でさまざまな物質の時間発展を観察できるようになることが期待される。

#### <引用文献>

[1] J. Salmon, Z. Harmany, C. Deledalle, and R. Willett, *J Math Imaging Vis* 48, 279-294 (2014).

[2] T. Nagase, M. Komatsu, Y. G. So, T. Ishida, H. Yoshida, Y. Kawaguchi, Y. Tanaka, K. Saitoh, N. Ikarashi, M. Kuwahara, and M. Nagao, *Phys. Rev. Lett.* 123, 137203 (2019).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

|   |                      |
|---|----------------------|
| 1. 著者名<br>T. Nagase, M. Komatsu, Y.G. So, T. Ishida, H. Yoshida, Y. Kawaguchi, Y. Tanaka, K. Saitoh, N. Ikarashi, M. Kuwahara, M. Nagao           | 4. 巻<br>123          |
| 2. 論文標題<br>Smectic Liquid-Crystalline Structure of Skyrmions in Chiral Magnet Co <sub>8.5</sub> Zn <sub>7.5</sub> Mn <sub>4</sub> (110) Thin Film | 5. 発行年<br>2019年      |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review Letters   | 6. 最初と最後の頁<br>137203 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1103/PhysRevLett.123.137203   | 査読の有無<br>有           |
| オープンアクセス<br>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<br>-            |

〔学会発表〕 計22件（うち招待講演 0件/うち国際学会 6件）

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>篠崎暉, 福和果歩, 石田高史, 桑原真人, 三好敏喜, 新井康夫, 齋藤晃    |
| 2. 発表標題<br>S01-CMOSイメージセンサを用いた単パルス電子線イメージングにおける高効率検出 |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第75回学術講演会                          |
| 4. 発表年<br>2019年                                      |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>富樫将孝, 石田高史, 小松正弥, 長尾全寛, 肖 英紀, 桑原真人, 齋藤 晃 |
| 2. 発表標題<br>Co-Zn-Fe合金の電子顕微鏡学的評価                     |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第75回学術講演会                         |
| 4. 発表年<br>2019年                                     |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>篠崎暉, 福和果歩, 石田高史, 桑原真人, 三好敏喜, 新井康夫, 齋藤晃 |
| 2. 発表標題<br>S01 ピクセル検出器を用いたナノ秒パルス電子線イメージング         |
| 3. 学会等名<br>第80回応用物理学会秋季学術講演会                      |
| 4. 発表年<br>2019年                                   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>石田 高史, 篠崎暉, 桑原真人, 齋藤晃, 三好敏喜, 新井康夫   |
| 2. 発表標題<br>Nanosecond imaging by a time-resolved transmission electron microscope with an S01 detector |
| 3. 学会等名<br>第2回量子線イメージング研究会   |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>M. Kuwahara, R. Yokoi, L. Mizuno, W. Nagata, Y. Yoshida, T. Ishida, T. Ujihara, K. Saitoh                 |
| 2. 発表標題<br>High-brightness pulsed electron microscopy toward advanced measurement of time-evolution in nanomaterials |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2019 (国際学会)                          |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>A. Shinozaki, K. Fukuwa, T. Ishida, M. Kuwahara, T. Miyoshi Y. Arai, K. Saitoh   |
| 2. 発表標題<br>High-sensitive electron imaging sensor toward nano-second single shot imaging    |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2019年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>T. Nagase, M. Komatsu, Y. G So, T. Ishida, H. Yoshida, Y. Kawaguchi, Y. Tanaka, K. Saitoh, N. Ikarashi, M. Kuwahara, M. Nagao |
| 2. 発表標題<br>bservation of Anisotropic Skyrmion Interactions Using Lorentz Transmission Electron Microscopy                                |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2019 (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>篠崎暉, 石田高史, 桑原真人, 三好敏喜, 新井康夫, 齋藤 晃        |
| 2. 発表標題<br>透過型電子顕微鏡によるSOI技術をもちいた積分型CMOSイメージセンサの性能評価 |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第74回学術講演会                         |
| 4. 発表年<br>2018年                                     |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>篠崎 暉, 福和果歩, 石田高史, 桑原真人, 三好敏喜, 新井康夫, 齋藤晃 |
| 2. 発表標題<br>パルス電子線を用いた積分型SOIピクセル検出器の性能評価            |
| 3. 学会等名<br>第1回量子線イメージング研究会                         |
| 4. 発表年<br>2018年                                    |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Hamanaka, H. Suzuki, T. Ishida, M. Kuwahara, K. Saitoh       |
| 2. 発表標題<br>Magnetic structures in Nano-Fabricated Pt/Co/Ta Multilayer Film |
| 3. 学会等名<br>19TH INTERNATIONAL MICROSCOPY CONGRESS (国際学会)                   |
| 4. 発表年<br>2018年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>濱中幸祐, 富樫将孝, 桑原真人, 石田高史, 齋藤 晃     |
| 2. 発表標題<br>Pt/Co/Ta磁性多層膜の作製と電子顕微鏡を用いた磁気構造解析 |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会第74回年次大会                   |
| 4. 発表年<br>2019年                             |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>篠崎 暉, 福和果歩, 石田高史, 桑原真人, 三好敏喜, 新井康夫, 齋藤 晃 |
| 2. 発表標題<br>透過電子顕微鏡を用いたsoiピクセル検出器の性能評価               |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会第74回年次大会                           |
| 4. 発表年<br>2019年                                     |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>富樫将孝, 石田高史, 小松正弥, 長尾全寛, 肖 英紀, 桑原真人, 齋藤 晃 |
| 2. 発表標題<br>透過型電子顕微鏡を用いたCo-Zn-Fe合金の磁気構造観察            |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会第74回年次大会                           |
| 4. 発表年<br>2019年                                     |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>H. Suzuki, M. Kuwahara, T. Ishida, M. Nagao, K. Saitoh  |
| 2. 発表標題<br>Fabrication and analysis of Pt/Co/Ta multilayer disks for investigation of a magnetic chirality |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (国際学会)                |
| 4. 発表年<br>2017年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Hamanaka, H. Suzuki, T. Ishida, M. Kuwahara, K. Saitoh                                 |
| 2. 発表標題<br>Fabrication and Evaluation of Structure Controlled Magnetic Thin Film for TEM Observation |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (国際学会)          |
| 4. 発表年<br>2017年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>鈴木 潤士、桑原 真人、石田 高史、長尾 全寛、齋藤 晃              |
| 2. 発表標題<br>磁気キラリティを有するPt/Co/Ta多層膜ディスクの作製と顕微鏡学的磁気構造解析 |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第73回学術講演会                          |
| 4. 発表年<br>2017年                                      |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>濱中幸祐、鈴木潤士、石田高史、桑原真人、齋藤晃      |
| 2. 発表標題<br>ナノスケールに構造制御した磁性薄膜の作製と電子顕微鏡評価 |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第73回学術講演会             |
| 4. 発表年<br>2017年                         |

|                                     |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>石田高史                     |
| 2. 発表標題<br>S01ピクセル検出器の電子線イメージングへの応用 |
| 3. 学会等名<br>第8回S01PIX研究会             |
| 4. 発表年<br>2017年                     |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>石田高史、篠崎暉、桑原真人、三好敏喜、新井康夫、齋藤晃     |
| 2. 発表標題<br>低加速透過電子顕微鏡を用いたS01ピクセルディテクタの性能評価 |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2017年秋季大会                 |
| 4. 発表年<br>2017年                            |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>濱中幸祐、鈴木潤土、石田高史、桑原真人、齋藤晃      |
| 2. 発表標題<br>ナノスケールに構造制御した磁性薄膜の作製と電子顕微鏡評価 |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2017年秋季大会              |
| 4. 発表年<br>2017年                         |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>篠崎暉、石田高史、桑原真人、三好敏喜、新井康夫、齋藤晃 |
| 2. 発表標題<br>透過電子顕微鏡を用いたSOIピクセル検出器の性能評価  |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会第73回年次大会              |
| 4. 発表年<br>2017年                        |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>桑原真人、鈴木潤土、濱中幸祐、石田高史、齋藤晃              |
| 2. 発表標題<br>電子線ホログラフィーを用いたPt/Co/Ta多層膜ディスクの磁気構造解析 |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会第73回年次大会                       |
| 4. 発表年<br>2017年                                 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

|         |                           |                       |    |
|---------|---------------------------|-----------------------|----|
| 6. 研究組織 | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|---------|---------------------------|-----------------------|----|