

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2009～2013

課題番号：21221005

研究課題名(和文) スピン偏極パルスTEMの開発とナノスピン解析への応用

研究課題名(英文) Development of spin-polarized pulsed TEM and the application of spin-resolved analysis

研究代表者

田中 信夫 (Tanaka, Nobuo)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授

研究者番号：40126876

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 162,000,000円、(間接経費) 48,600,000円

研究成果の概要(和文)：世界で初めてスピン偏極電子線を用いたスピン-パルスTEM(SP-TEM)を実現させた。SP-TEMはビームエネルギー30keVにおいて、偏極度90%、輝度 10^{-7} A/cm².sr以上、空間分解能1.6nm以下、エネルギー分散幅240meV以下を実現しており、これによるTEM像や回折図形の取得に成功した。またピコ秒パルス電子線生成も実現しており、時間・空間・スピンの5次元情報を得ることを可能とした。狭いエネルギー線幅、高い干渉性と高いスピン偏極度を同時に実現した透過電子顕微鏡は他に類を見ない装置であり、本性能は今後、分析装置として新たな物理の解明に役立つと思われる。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded in a development of Spin-polarized and Pulsed TEM (SP-TEM) for the first time in the world. The SP-TEM has realized high performances of 90-% spin-polarization, 10^{-7} -A/cm²sr brightness, 1.6-nm spatial resolution and less 240-meV energy spread with a beam energy of 30 keV simultaneously. It can provide a TEM image and diffraction pattern of iron thin film. Furthermore we have observed a pico-second pulsed electron beam in the SP-TEM. These results indicate that spatial-, temporal- and spin-resolved measurement is realized in this research program. It is amazing apparatus that the narrow line-width of zero-loss peak, the long spatial coherence length and the high spin-polarization are realized simultaneously. The abilities are useful to open a frontier of analytical method and research new physics and new material sciences.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ構造科学

キーワード：電子顕微鏡 スピンエレクトロニクス 量子ビーム

1. 研究開始当初の背景

近年の磁気記録装置の高密度化への過酷な要求は、磁気記録単位を 5nm 以下にすることを必須とし、それに対応する磁気量子ドットの歩止まりの高い製造とその磁気状態の正確な評価を要求している。TEM で磁性状態の観察を行う方法の一つとして、スピン偏極電子ビームの利用が考えられる。近年、名古屋大学において、GaAs 半導体歪超格子構造をベースとした高性能フォトカソードが開発され、90%のスピン偏極度と LaB₆ 熱電子源よりもさらに一桁高い輝度 $1.0 \times 10^7 \text{ A m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ V}^{-1}$ をすでに実現している。

2. 研究の目的

スピン偏極電子線を用いた高分解能 TEM を世界で初めて開発する。それを用いて次世代大容量 HDD 用に開発する FePt などのナノサイズ磁気量子ドットのスピン構造やトンネル磁気抵抗 (TMR) 素子内の磁化反転現象を精緻に研究する。さらに分解能が 1nm 以下に達した段階で、各種スピントロニクスデバイスの素子性能を支配する界面スピン構造を原子レベルで可視化し、新しいナノスピン解析技術の開発に役立てることも目的としている。

3. 研究の方法

本研究は世界で初めての装置開発と測定実験を含むため、以下の 5 年間の計画で研究を進める。本研究はこれを次の 7 つの部分に分割して、綿密な研究開発設計をしている。

それぞれの内容は、(1)高輝度・高偏極度フォトカソード開発、(2)30-50keV の TEM 用偏極電子銃の開発、(3)スピン回転器および TEM への入射最適化設計および装置開発、(4)光または磁場、電場励起用試料ホルダー一部および対物レンズ部の開発、(5)偏極電子による像の高感度・高精度記録法、および磁気状態を取り出す画像処理装置の開発、(6)種々の磁性関係薄膜、ナノワイヤー微粒子の作製法の開発と観察、(7)電子のスピンによる磁気ポテンシャルによる電子線の散乱の理論的研究である。最終的にこれらを統合し、スピン偏極電子線を用いた高分解能スピン構造観察を実現する。

4. 研究成果

TEM 用に 50keV 偏極電子源の設計・作製を行い、スピン偏極電子線の発生に成功した。また、この成功によりスピン偏極電子線を TEM へ注入することを可能にした。全体計画の心臓部である本開発は、計画通りに成功し、また新たにスピン回転器の設計製作を行い、電子スピンの制御を行うことを可能にした。また、照射系についても新規にダブルギャップレンズを開発し、スピン方向を正確に制御しながら試料に照射することを可能にしている。

一方、スピン偏極電子銃用・背面照射

型フォトカソードの開発では、GaAs-GaAsP 歪み超格子を活性層に使用しつつ、中間層を AlGaAs に変える等の工夫を施すことにより向上を図った。結果、偏極度 90% を保ったまま量子効率を 0.4% へと従来型の 4 倍に向上することに成功した。これにより、顕微鏡における輝度の向上、長期安定動作を可能にする重要な成果を得た (図 1)。

これら新規に開発したスピン偏極電子銃とスピン回転器を含む照射系ならびに TEM 本体の結合に成功し、さらに、スピン偏極電子線をスピン回転器、CL、TEM 本体、そして観察室まで輸送することに成功した。その全体像を図 2 に示す。このときの電氣的安定性は 10^{-6} 、真空度 10^{-7} Pa であり、差動排気系をより多段にした電圧可変 20kV-40kV の TEM にスピン偏極電子銃を取り付けスピン偏極電子線により図 3 に示す TEM 像および回折図形の取得に成功した。

また、電子線の持つエネルギー分散幅は現行の最高輝度を有する電界放出型電子源を越える 240meV 以下という性能を得ることに成功した (図 4)。これによりエネルギー損失分光において高いエネルギー分解能を実現でき、詳細な組成分析や小さなエネルギー分裂を検出することが可能となる。また可干渉性能についても図 5 に示す通り、干渉効果による縞を生成できており、十分な可干渉長を有していることを確認した。これを用いたスピン依存の位相情報検出が可能であることを実証した。

もう一つの特徴であるパルス電子線発生についても、ミリ秒~ピコ秒のパルス電子生成に成功しており、図 6 に代表的なナノ秒パルス電子線の時間構造測定結果を示す。これにより、フォトカソードを用いた透過電子顕微鏡で初めて時間分解測定を実現した。実際に図 10 に示すように、TEM 像の時間分解測定が本研究で実現された。図 7 は 1kHz で TEM が動いている状態に、1kHz で同期したパルス電子線を照射することにより CW 電子線と同様の静止した TEM 像を得ることに成功している。また、時間分解は同期信号に時間的ずれを与えることで各時間ごとの TEM 像をパルス幅で切り出すことを実証している。

これらの性能を用いて、透過電子回折図形や像をスピンごとに画像処理してスピン依存散乱過程の抽出を試みた。また、これに必要な解析手法を確立した。本測定には主に磁性試料を用いるため、電子顕微鏡内の試料位置においてレンズに必要な強磁場をかけないために、レンズギャップ付近の磁場をミリガウスオーダーにしたローレンツレンズも導入した。これにより、スピン偏極電子銃から取り出した高スピン偏極電子をパターン

化した Fe-Ni 薄膜やハーフメタルナノ積層構造を、スピン構造を壊すことなく測定することに成功した。これによりサイズ効果による磁壁構造をスピン偏極電子線を用いて測定することに成功した。

狭いエネルギー線幅、高い干渉性と高いスピン偏極度を同時に実現した透過電子顕微鏡は他に類を見ない装置であり、本性能は今後、分析装置として新たな物理の解明に役立つと思われる。またスピノール干渉を純粋な状態で実現できる唯一の装置であり、フェルミオンによる量子力学の検証装置として絶大な威力を発揮するものとなる。さらにこのスピノール干渉によりスピン偏極度の測定も可能となり、スピン密度行列の実測が容易に出来ると思われる。測定対象試料についても、今後さらなる応用としてカイラル磁性体などのマルチフェロイック材料の計測や電流誘起の磁壁移動測定などに挑み、省エネルギーデバイスに寄与する次世代スピントロニクス材料に展開していく。本研究は、分析手法のみならず、相対論的量子力学から物性物理まで包括的かつ複数分野融合による成果であり、今後の発展性が期待されるものである。

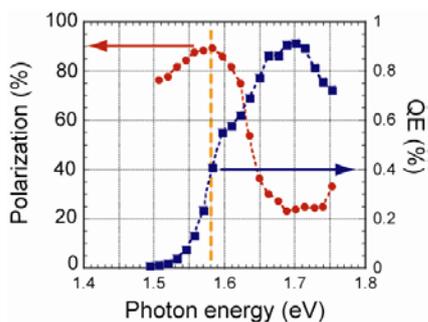


図1. 新規開発したフォトカソードの偏極度と量子効率の励起波長依存



図2. 本研究にて開発に成功したスピン偏極透過電子顕微鏡の全体写真

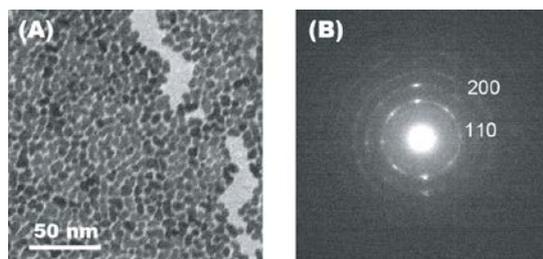


図3. スピン偏極電子顕微鏡において取得したTEM像とその回折像。試料はFeである

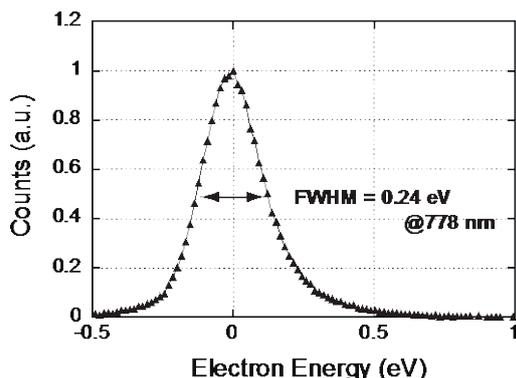


図4. スピン偏極透過電子顕微鏡における電子線のエネルギー分散幅。

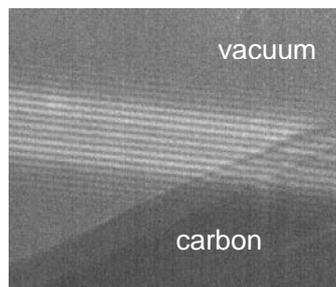


図5. スピン偏極電子による干渉縞生成。カーボンと真空領域における位相変化を捉えている。

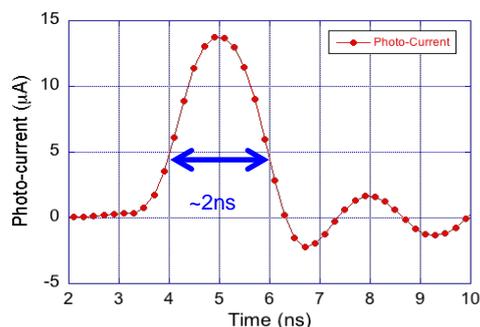


図6. ナノ秒パルス電子線の発生。ファラデーカップ型電流モニターによる直接時間構造観察を行ったデータ。

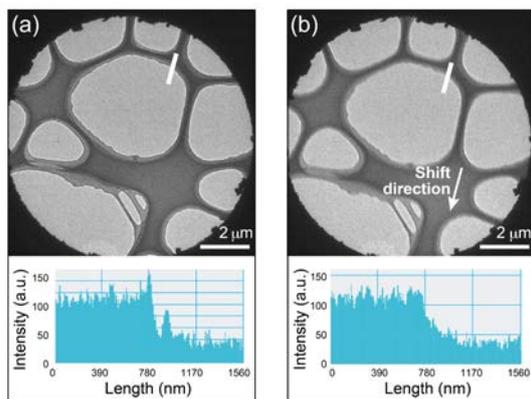


図7. パルス電子による時間分解測定結果。
(a)はCW電子線によるTEM像、(b)はパルス電子線によるTEM像。各下段は白線のラインプロファイル。

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9件)

1. X. Jin, S. Fuchi, and Y. Takeda, "Effect of compressive strain relaxation on surface morphology in GaAsP growth on GaP substrate", J. of Crystal Growth, 370(2013), 201-207.
2. M. Kuwahara, Y. Nambo, S. Kusunoki, X Jin, K. Saitoh, H. Asano, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Nakanishi and N. Tanaka, "Phase-locking of oscillating images using laser-induced spin-polarized pulse TEM", Microscopy 62(6) (2013) 607-614.
3. 桑原真人、中西疆、竹田美和、田中信夫
「スピン偏極パルス透過型顕微鏡の開発-偏極電子源の原理とその応用」, 顕微鏡 48巻 1号 (2013) 3-8.
4. X. G. Jin, H. Nakahara, K. Saitoh, T. Saka, T. Ujihara, N. Tanaka, Y. Takeda, "Analysis of thickness modulation in GaAs/GaAsP strained superlattice by TEM observation", Journal of Crystal Growth 353 (2012), 84 - 87.
5. M. Kuwahara, S. Kusunoki, X. G. Jin, T. Nakanishi, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, and N. Tanaka, "30-kV spin-polarized transmission electron microscope with GaAs-GaAsP strained superlattice photocathode", Applied Physics Letters, 101(3), (2012) 033102.
6. M. Kuwahara, F. Ichihashi, S. Kusunoki, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, T. Nakanishi, N.

Tanaka, "Development of spin-polarized and pulsed TEM", Journal of Physics: Conference Series 371 (2012) 012004.

7. K. Saitoh, Y. Hasegawa, N. Tanaka, and M. Uchida, "Production of electron vortex beams carrying large orbital angular momentum using spiral zone plates", Journal of Electron Microscopy, 61(3) (2012) 171-177.
8. T. Miyawaki, N. Sugimoto, N. Fukatani, T. Yoshihara, K. Ueda, N. Tanaka, and H. Asano, "Structural and electrical properties of half-Heusler LaPtBi thin films grown by 3-source magnetron co-sputtering", J. Appl. Phys, 111 (2012) 07E327-1~07E327-3.
9. M. Kuwahara, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, T. Nakanishi, and N. Tanaka, "Development of spin-polarized transmission electron microscope", Journal of Physics: Conference Series, 298 (2011) 012016.

[学会発表] (計 21 件)

1. 桑原真人、南保由人、鮫島健輔、楠総一郎、齋藤晃、宇治原徹、浅野秀文、竹田美和、田中信夫
「半導体光陰極を用いたTEMの空間コヒーレンス測定」, 日本物理学会 第69回年次大会、2014年3月27-30日、東海大学湘南キャンパス
2. M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Sameshima, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, T. Nakanishi and N. Tanaka, "Development of spin-polarized transmission electron microscope". 9th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '13, 2-6 Dec. 2013, Hawaii, USA.
3. 桑原真人、楠総一郎、南保由人、鮫島健輔、齋藤晃、宇治原徹、浅野秀文、竹田美和、田中信夫
「スピン偏極パルスTEM」, 日本顕微鏡学会第57回シンポジウム、2013年11月16日、ウインクあいち。
4. 楠総一郎、桑原真人、宇治原徹、浅野秀文、竹田美和、齋藤晃、田中信夫
「スピン偏極透過電子顕微鏡による電子線空間干渉性」日本物理学会秋季大会、2013年9月25~28日、徳島大学常三島キャンパス。
5. 桑原真人、南保由人、楠総一郎、齋藤晃、宇治原徹、竹田美和、

- 中西 疆, 田中 信夫
「スピン偏極パルスTEMによるパルス同期TEM像の取得」, 日本顕微鏡学会第69回学術講演会、2013年5月20～22日、ホテル阪急エキスポパーク.
6. M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, T. Nakanishi and N. Tanaka,
"Spin-polarized transmission electron microscope toward an analysis of sub-picosecond dynamics", The 3rd Banff Meeting on Structural Dynamics Ultrafast Dynamics with X-Ray and Electrons, 17-20 Feb. 2013, Banff, Alberta, Canada.
 7. N. Tanaka, M. Kuwahara, K. Saitoh, S. Kusunoki, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and T. Nakanishi,
"Spin-polarized and Pulsed TEM Using a Laser-driven Semiconductor Photocathode", Microscopy & Microanalysis 2012, 30 July - 2 Aug. 2012, Phoenix, USA
 8. 桑原真人、楠聡一郎、宇治原徹、浅野秀文、竹田美和、中西疆、齋藤晃、田中信夫
「スピン偏極透過電子顕微鏡の開発とその性能」, 日本顕微鏡学会第68回学術講演会、2012年5月14～16日、つくば国際会議場.
 9. 田中信夫、桑原真人、楠聡一郎、浅野秀文、宇治原徹、齋藤晃、竹田美和、中西疆、
「レーザー励起半導体電子源を用いた30kVパルスTEMの開発」, 日本顕微鏡学会第68回学術講演会、2012年5月14～16日、つくば国際会議場.
 10. 楠聡一郎、桑原真人、宇治原徹、浅野秀文、竹田美和、中西疆、齋藤晃、田中信夫
「スピン偏極TEMにおけるNEAフォトカソードからの低エネルギー分散ビームの生成」, 日本顕微鏡学会第68回学術講演会、2012年5月14～16日、つくば国際会議場.
 11. M. Kuwahara, S. Kusunoki, K. Saitoh, T. Ujihara, and N. Tanaka,
"Spin-polarized TEM using an NEA photocathode", The 3rd International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC3), 9-11 May. 2012, Gifu.
 12. M. Kuwahara, S. Kusunoki, F. Ichihashi, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, T. Nakanishi, and N. Tanaka,
"Injection system of spin-polarized transmission microscopy", International Symposium on EcoTopia Science 2011, 9-11 Dec. 2011, Nagoya.
 13. M. Kuwahara, T. Nakanishi, Y. Takeda, K. Saito, T. Ujihara, H. Asano, and N. Tanaka,
"Development of spin-polarized and pulsed TEM", Electron Microscopy and Analysis Group Conference 2011, 6-9 Sep. 2011, Birmingham UK.
 14. N. Tanaka,
"In-situ gas study and 3D quantification of titania photocatalysts by advanced electron microscopy", Electron Microscopy and Analysis Group Conference 2011, 6-9 Sep. 2011, Birmingham UK.
 15. 桑原真人、中西疆、竹田美和、浅野秀文、齋藤晃、宇治原徹、田中信夫
「スピン偏極パルスTEM用電子源と照射系の開発」, 日本顕微鏡学会第67回学術講演会、2011年5月16日、福岡.
 16. M. Kuwahara, M. Yamamoto, X. G. Jin, T. Ujihara, T. Nakanishi, Y. Takeda,
"Superlattice photocathode development for low emittance" , Photocathode Physics for Photoinjectors, 12-14 October. 2010, NY, USA.
 17. M. Kuwahara
"Development of spin-polarized transmission microscope" , Workshop on Sources of Polarized Leptons and High Brightness Electron Beam (PESP2010), 21-24 September 2010, Bonn, Germany.
 18. M. Kuwahara, T. Nakanishi, N. Tanaka, Y. Takeda, H. Asano, K. Saito, T. Ujihara,
"Pulsed spin-polarized electron source toward a transmission electron microscope" , The 17th IFSM International Microscopy Congress, 19-24 September, 2010, Rio de Janeiro, Brazil.
 19. M. Kuwahara, M. Yamamoto, X. G. Jin, T. Ujihara, T. Nakanishi, Y. Takeda,
"Superlattice photocathode development for low emittance" , The 17th IFSM International Microscopy Congress, 19-24 September, 2010, Rio de Janeiro, Brazil.
 20. 桑原 真人, 中西 疆, 田中 信夫, 竹田 美和, 浅野 秀文, 齋藤 晃, 宇治原 徹
「スピン偏極パルスTEM用電子源の特性評価」, 日本顕微鏡学会66回学術講演会、2010年5月23-26日、名古屋

屋国際会議場.

21. 田中 信夫, 中西 彊, 竹田 美和,
浅野 秀文, 齋藤 晃, 宇治原 徹,
桑原 真人

「スピン偏極パルス透過電子顕微鏡
の開発1」, 日本顕微鏡学会66回学
術講演会, 2010年5月23-26日, 名古
屋国際会議場.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計3件)

名称: 電子顕微鏡

発明者: 田中信夫, 中西彊, 竹田美和, 浅野秀文, 齋藤晃, 宇治原徹, 桑原真人

権利者: 名古屋大学

種類: PCT 出願、PCT/JP2011/053790

番号: 特願 2012-508141

出願年月日: 2011年2月22日

国内外の別: 国内

名称: 電子顕微鏡

発明者: 田中信夫, 中西彊, 竹田美和, 浅野秀文, 齋藤晃, 宇治原徹, 桑原真人

権利者: 名古屋大学

種類: PCT 出願、PCT/JP2011/053790

番号: US13/637

出願年月日: 2013年1月10日

国内外の別: 国外

名称: 電子顕微鏡

発明者: 田中信夫, 中西彊, 竹田美和, 浅野秀文, 齋藤晃, 宇治原徹, 桑原真人

権利者: 名古屋大学

種類: PCT 出願、PCT/JP2011/053790

番号: EP11762411.4

出願年月日: 2013年2月6日

国内外の別: 国外

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 信夫

名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授
総括、電子銃と TEM の統合、ナノ磁性体
の研究

研究者番号: 40126876

(2) 研究分担者

竹田 美和

名古屋大学・工学研究科・名誉教授
半導体電子源の結晶成長

研究者番号: 20111932

(3) 研究分担者

浅野 秀文

名古屋大学・工学研究科・教授

ナノ磁性体の作製、界面スピン状態の研究

研究者番号: 50262853

(4) 研究分担者

齋藤 晃

名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授

スピン・磁気散乱の理論的、スピン画像記
録法の開発

研究者番号: 50292280

(5) 研究分担者

桑原 真人

名古屋大学・エコトピア科学研究所・助教

スピン偏極パルス電子銃の開発・研究

研究者番号: 50377933