

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 29 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24651123

研究課題名(和文) 低速電子顕微鏡における相対論的スピン散乱の実験的検証

研究課題名(英文) Experimental verification of relativistic spin-scattering in low energy TEM

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) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：(1)スピン偏極した電子と試料との相互作用評価のため、ディラック方程式から始めスピン相互作用項を導出し、マルチスライス法に適した波動関数を求めた。結果、TEMの像コントラスト評価のシミュレーション中に相対論的スピン相互作用項を入れ込むことに成功。(2)短電子パルスを発生する2通りの方法を試みた。音響光学素子と連続レーザーにより、25nsのパルス電子線を発生させ、その時間特性を調べた。パルスレーザーを使って20psのパルス電子線を発生。このパルス巾精密測定のためストリークカメラ法を開発。(3)スピン反転による位相像差分を検出する方法も開発し、1.5rad以下の位相差の検出に成功。

研究成果の概要(英文)：(1) In order to estimate the interaction between spin-polarized electrons and specimens, we derived the interaction terms by starting with Dirac's equation, and obtained the wave functions below the specimens which are fit for multislice method. By the procedure, we succeeded in inclusion the interaction terms into multislice method. (2) In order to obtain TEM images by electron pulse of picosecond, we adopted two methods. One is to use continuous laser and acoustic-optical modulator (AOM) and to obtain 25 nanosecond electron pulses for qualification of the pulse. Another is to use mode-locked Ti-Sapphire laser to obtain 20 picosecond electron pulse. For accurate estimation of the pulse-width, we have developed a streak camera method using electrons. (3) We have developed a new method of measuring the phase difference of electrons and successfully resulted in detection less than 1.5 rad.

研究分野：ナノ構造科学、電子顕微鏡学

キーワード：スピン偏極電子線の相互作用 TEM 磁性体薄膜 マルチスライスシミュレーション

1. 研究開始当初の背景

透過電子顕微鏡(TEM)は 21 世紀に入り、対物レンズの球面収差補正器と電子銃下のエネルギー単色器が実用化し、点分解能は数十ピコメートル、エネルギー分解能は 50meV 以下に到達した。しかしながら、結像に使われているプローブ電子と試料との相互作用は 1930 年代の開発期と変わっておらず、試料の静電ポテンシャルによる屈折と、磁場ベクトルによるローレンツ力偏向を相変わらず用いている。電子には電荷の他にスピンと角運動量の量子的性質があり、次世代の電子顕微鏡開発のために、この 2 つの量子数と試料との相互作用の詳細な検討が待たれていた。本研究は電子の相対論的性質であるスピンと試料との相互作用について新しい研究を行うものである。

2. 研究の目的

近年、ナノ構造材料や生体物質の微細構造観測の際のダメージ低減のために、低加速エネルギーの透過電子顕微鏡法が注目されている。これらは収差補正技術の向上ならびにクライオ試料ホルダーを備えることにより可能となってきている。特に 60keV~20keV 程度の電子線では、その振る舞いは相対論と非相対論の中間に位置する。このため、クーロン相互作用のみならず、スピンの相互作用の効果が現れてくる。またこのエネルギー領域では非線形性が出現することも期待できる。本研究ではこの現象を電子顕微鏡において実験的に観測する試みを世界で初めて行うことを目指した。そして相対論を考慮した電子スピンと物質の相互作用を実験的に探究し、スピン/カイラル依存性を分析する新たな手法の礎を築くことが本研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 初年度は下記の項目について進めた。

磁気散乱項の測定を可能にするための装置・測定系の構築：透過電子顕微鏡にて広角散乱を用いた磁気散乱項の測定を可能にするための装置・測定系の構築を行った。スピンとの相互作用を入れた議論を行っていき、スピンとの相互作用を入れた数値計算を行う。次に相対論効果を取り入れた場合の磁気散乱について、まず解析的手法により計算を導入した。具体的には藤原らの理論をベースとして、スピンの効果を摂動としてハミルトニアンを記述しボルン近似のもと散乱断面積を計算する式を得た。透過電子顕微鏡において広角散乱実験条件を検討した：実験については、透過電子顕微鏡において広角散乱実験条件を最適化した。そして、プローブビームが無偏極電子線の場合で磁気散乱が観測されるのかどうかの実験を行った。このときのスピン依存の広角散乱した電子信号は微小であると予想される。よって、入射

電子線に時間変調をかけ、ロックインアンブを通すことで微小電流計測が可能な測定系の構築を行なった。

(2) 平成 26 年度は、下記の 2 項目について研究を遂行した。

スピン偏極電子を用いた散乱実験：前年度に準備を行ったスピン偏極電子を用いた散乱実験を遂行した。これにより、散乱断面積のスピン依存性について、電子エネルギー、散乱角度に対する振る舞いを測定した。

時間変調電子線による計測系の構築：また、スピン偏極電子線はレーザー誘起型の電子源であるので、ドライブレザーに時間変調をかけることで容易に電子線の時間構造を変えることが可能である。このため、電子源を制御しているレーザーに時間変調をかける光学系の構築を進めた。次にロックイン可能な変調時間を決定し、S/N の向上に努め、時間変調した電子線による微小電流計測系の確認を行った。

(3) 平成 26 年度は、理論計算と実験結果を合わせて解析を行った。

実験：磁気散乱効果とその角度依存性について 実験としてはスピン偏極電子線を用いた場合に、磁気散乱による効果が顕著に現れるか測定を行った。このとき広角散乱において、方位による電子線信号の偏りに注視して計測を進めた。この時、電子顕微鏡における測定方法として、明視野と暗視野の二通りある。よってまず通常の明視野像において、スピン偏極方向の反転により、像強度の差分をとることでクーロン相互作用項を差し引く。このときに非対称度が確認されるか、ある場合には相互作用の強さが如何程かを測定した。次に暗視野像を取得し、先程と同様にスピン偏極方向の反転によりバックグラウンド成分を削除し、そのデータにスピン依存の差がどの程度出るのかを確認した。この効果をより詳しく、また物理的議論ができるよう、散乱角依存についても測定を行った。解析と考察 この実験結果を理論計算結果と比較を行い、スピン軌道相互作用、双極子-双極子、スピンの交換相互作用の項がどのように効果として現れてくるのか解析を行う。このとき、計算に含めていない干渉効果についても議論が必要となるか注意深く検証をした。

4. 研究成果

(1) マルチスライスシミュレーション

ディラック方程式より弾性散乱過程におけるスピン相互作用項は

$$\begin{aligned}
& [(W + e\phi) + \frac{1}{2mc^2}(W + e\phi)^2 + \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \\
& + i \frac{e\hbar}{mc} \mathbf{A} \cdot \nabla - \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2 + i \frac{\mu_0}{2mc} \mathbf{E} \cdot \mathbf{p} \\
& - \frac{\mu_0}{2mc} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{p}) - \mu_0 \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{H}] \mu_A = 0
\end{aligned}$$

となり、マルチスライスシミュレーションにおける求めるべきは波動関数は下記の通りとなることが分かった。

$$\begin{aligned}
& \varphi(x, y, z + \delta z) \\
& \approx \text{FT}^{-1} \left[\exp(i\lambda F(\mathbf{G})\delta z) \times \text{FT} [i\lambda K(\mathbf{G})\delta z \cdot \varphi(x, y, z)] \right], \\
& F(\mathbf{G}) = \frac{\frac{\hbar^2}{2m} \mathbf{G}^2 + \left\{ i \frac{e\hbar}{mc} \mathbf{A}_{xy} + \frac{\hbar\mu_0}{2mc} \mathbf{E}_{xy} + i \frac{\hbar\mu_0}{2mc} (\boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{E})_{xy} \right\} \mathbf{G}}{\frac{\hbar^2}{m} + i \frac{e\hbar}{mc} A_z + \frac{\hbar\mu_0}{2mc} E_z + i \frac{\hbar\mu_0}{2mc} (\boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{E})_z}, \\
& K(\mathbf{G}) = \frac{-\mu_0 \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{H} - \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2 + e\phi + \frac{W^2}{2mc^2} + \frac{e\phi W}{mc^2} + \frac{(e\phi)^2}{2mc^2}}{\frac{\hbar^2}{m} + i \frac{e\hbar}{mc} A_z + \frac{\hbar\mu_0}{2mc} E_z + i \frac{\hbar\mu_0}{2mc} (\boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{E})_z},
\end{aligned}$$

これにより、マルチスライスシミュレーションにおけるスピン依存弾性散乱の導入が可能となった。精密には二項の波動関数で取り扱う必要があるが、エネルギー領域が比較的低い状態を考えているため近似により一項のみの形式にして計算時間の短縮を図る工夫をしている。

(2) 時間変調した電子線の発生

スピン偏極電子半導体フォトカソードから発生させるため、駆動レーザーを時間変調することで電子線の時間構造を変えることが可能である。本研究では、2通りの方法を実施した。一つは、音響光学素子と連続レーザーの組み合わせにより時間変調である。もう一方はフェムト秒レーザーをシードレーザーとして十数ピコ秒から数百フェムト秒の時間変調を加える方式のものである。音響光学変調方式では 25ns 程度のパルスまで連続して可変することが可能となり、

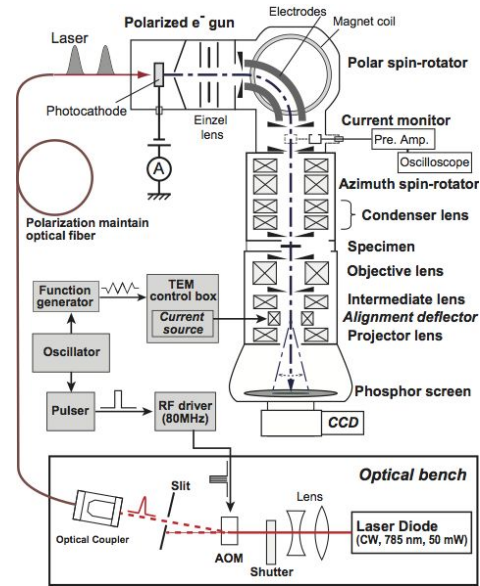


図1. ピコ秒パルス電子線を用いたストリーク法によるパルス幅測定の様子。

ロックイン検出における位相合わせが容易となる。図1に SPTEM と本光学変調器の実験セットアップを示す。同期信号としてマスターオーシレーターの信号をレーザーと TEM 回路へ入れることで装置全体の同期を取るシステムを構築した。このように顕微鏡とレーザーを同期させることでロックイン検出ができる装置に改良することに成功した。また、このシステムを用いて得られた時間変調スピン偏極電子線の時間構造の一例を図2に示す。

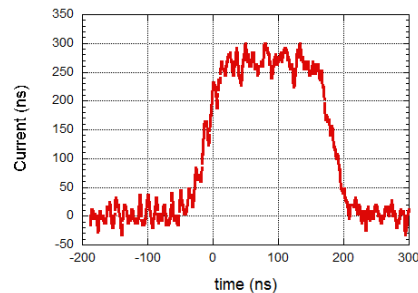


図2. 音響光学素子により強度変調されたスピン偏極電子線のビーム電流量の時間依存

一方、シードレーザーにモードロック Ti Sapphire レーザーを用いたシステムについても構築を行い、図3に示す光学系を製作した。これはフェムト秒レーザーのもつ周波数帯域をスリットにより狭窄することで数百フェムト秒から数十ピコ秒までの時間幅を可変にする工夫を行っている。これにより、数十ピコ秒の時間幅を持つスピン偏極電子線発生を実現するに至っている。数十ピコ秒パルス電子線の時間幅は、高速偏向器によるストリーク法を用いて実測された。図4にストリーク法により伸張されたパルスと元のパルス電子スポットである。偏向されているパルスでは幅が

伸張されている様子が見て取れる。これから計測されるパルス幅は 18 ± 3 ps である。

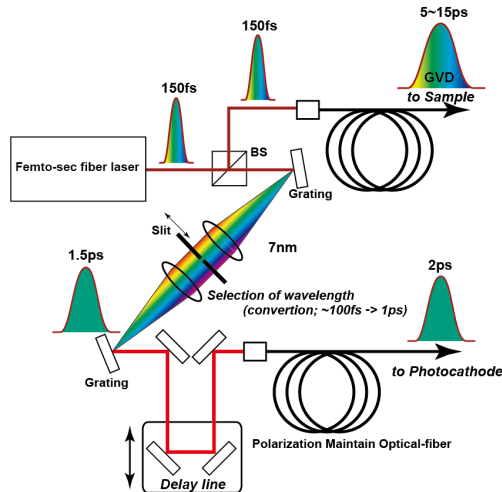


図 3 . フェムト秒レーザーをシードレーザーとしたピコ秒パルス電子線発生用光学系

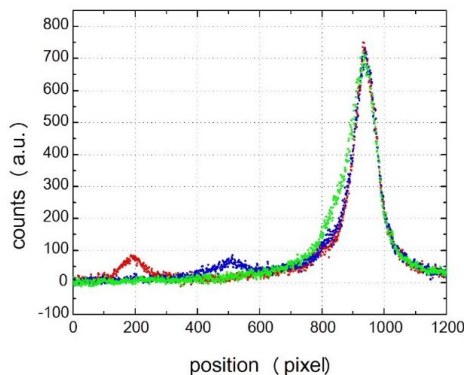


図 4 . ピコ秒パルス電子線を用いたストリーク法によるパルス幅測定の様子。

(3) スピン偏極電子線を用いた電子線ホログラムの実現と位相抽出

磁性体薄膜試料を用いて磁気散乱効果の抽出について実験を開始した。スピン偏極電子線による干渉縞の取得を可能にすることで、位相変化抽出を実現した(図 5)。これは磁気散乱による効果を位相から抽出するという新しい切り口である。次に、スピン偏極方向の反転により、位相像の差分を取得し解析を進めた。次に無偏極電子線による位相像を用いてバックグラウンド成分を削除し、そのデータにスピン依存の差がどの程度出るのかを確認した。この結果、 1.5rad 以下の位相変化を抽出することに成功した(図 6)。この結果はスピンによるゼーマン分離を抽出することが可能などところまで来ていることを示しており、物理的議論ができる手法を確立することに成功した。

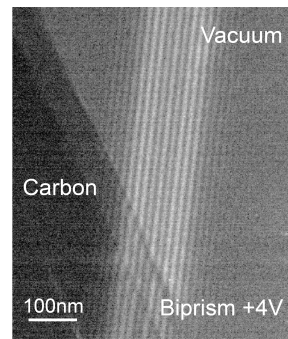


図 5 . スピン偏極電子線によるホログラムの様子

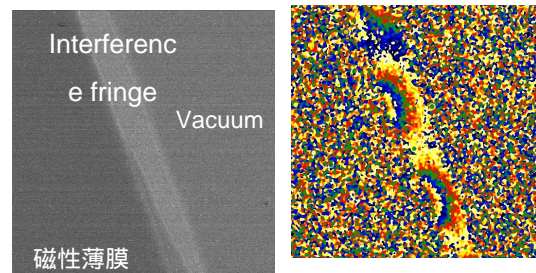


図 6 . 左図は磁性薄膜と真空領域の TEM 像。磁性薄膜と真空の境界領域に干渉縞が存在している。右図は左図から位相情報を抽出した位相像。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 11 件)

M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Saitoh, X. G. Jin, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, N. Tanaka, Coherence of a spin-polarized electron beam emitted from a semiconductor photocathode in a transmission electron microscope, Applied Physics Letters, 査読有、105 巻、2014, 193101 DOI: 10.1063/1.4901745

Y. Yamamoto, S. Arai, A. Esaki, J. Ohya, A. Satsuma and N. Tanaka, Statistical distribution of single atoms and clusters of supported Au catalyst analyzed by global high-resolution HAADF-STEM observation with morphological image-processing operation, Microscopy, 査読有、63 巻、2014, 209-218 DOI: 10.1093/jmicro/dfu001

N. Tanaka, M. Kuwahara, S. Arai, K. Sasaki and K. Saitoh, Dynamic observation from continuous to well-controlled pulsed electron beam in Nagoya University, AMTC Letters, 査読有、4 巻、2014, 58-59

Y. Nambo, M. Kuwahara, S. Kusunoki, K. Sameshima, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, N. Tanaka, Nano-second Time-Resolved Measurement in Spin-Polarized Pulse TEM, AMTC Letters, 査読有、4 巻、2014, 256

M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Sameshima, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, N. Tanaka, Spatial and temporal coherence in spin-polarized transmission

electron microscopy, AMTC Letters, 査読有、4 巻、2014, 262-263

X. G. Jin, H. Nakahara, K. Saitoh, N. Tanaka, and Y. Takeda, Nano-scale characterization of GaAsP/GaAs strained superlattice structure by nano-beam electron diffraction, Applied Physics Letters, 査読有、104 巻、2014, 113106 DOI: 10.1063/1.4869030

X. Jin, S. Fuchi and N. Tanaka, Effect of compressive strain relaxation on surface morphology in GaAsP growth on GaP substrate, J. of Crystal Growth, 査読有、370 巻、2013, 201-207 DOI:10.1016/j.jcrysgro.2012.09.008

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, 査読有、62 巻、2013 DOI:10.1093/jmicro/dft035
桑原真人、中西彊、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、査読有、48 巻、2013, 3-8

Xiuguang Jin, Hirotaka Nakahara, Koh Saitoh, Takashi Saka, Toru Ujihara, Nabuo Tanaka and Yoshikazu Takeda, Analysis of thickness modulation in GaAs/FaAsP strained superlattice by TEM observation, Journal of Crystal Growth, 査読有、353 巻、2012, 84-87
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, 査読有、101 巻、2012, 33102

[学会発表](計 22 件)

南部裕紀、齋藤晃、田中信夫、内田正哉、回折顕微鏡による電子らせん波の位相回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 21 日～2015 年 3 月 30 日、早稲田大学早稲田キャンパス

鮫島健輔、桑原真人、南保由人、齋藤晃、宇治原徹、田中信夫、浅香透、岡部桃子、スピン編極透過電子顕微鏡を用いた磁場体観察、2015 年 3 月 21 日～2015 年 3 月 30 日、早稲田大学早稲田キャンパス

田中信夫、桑原真人、スピン編極パルス TEM の開発とその可能性、日本顕微鏡学会第 39 回関東支部講演会(招待講演)、2015 年 2 月 28 日～2015 年 2 月 28 日、工学院大学

田中信夫、TEM と STEM:私の研究から、2014 年度超高压分解能顕微鏡法分科会(招待講演)、2015 年 2 月 20 日～2015 年 2 月 21 日、マホロバ・マインズ三浦
桑原真人、南保由人、鮫島健輔、浅野秀

文、宇治原徹、田中信夫、スピン編極パルス TEM におけるコヒーレンス、2014 年度超高压分解能顕微鏡法分科会(招待講演)、2015 年 2 月 20 日～2015 年 2 月 21 日、マホロバ・マインズ三浦

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(招待講演)、2014 年 5 月 11 日～2014 年 5 月 13 日、幕張メッセ国際会議場

南保由人、桑原真人、楠総一郎、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 TEM におけるナノ秒パルス電子線の発生、日本顕微鏡学会第 70 回学術講演会、2014 年 5 月 11 日～2014 年 5 月 13 日、幕張メッセ国際会議場

桑原真人、南保由人、浅野秀文、齋藤晃、宇治原徹、田中信夫、スピン偏極パルス TEM によるピコ秒パルス電子線発生、日本顕微鏡学会第 70 回学術講演会、2014 年 5 月 11 日～2014 年 5 月 13 日、幕張メッセ国際会議場

桑原真人、楠総一郎、南保由人、浅野秀文、齋藤晃、宇治原徹、竹田美和、田中信夫、スピン偏極 TEM における偏極電子線のコヒーレンス評価、日本顕微鏡学会第 70 回学術講演会、2014 年 5 月 11 日～2014 年 5 月 13 日、幕張メッセ国際会議場
N. Tanaka, Dynamic Observation from Continuous to Well-controlled Pulsed Electron Beams in Nagoya University, The 4th International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC4), 2014 年 5 月 8 日～2014 年 5 月 10 日、Hamamatsu

Y. Nambo, M. Kuwahara, S. Kusunoki, K. Sameshima, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and N. Tanaka, Nano-second Time-Resolved Measurement in Spin-Polarized Pulse TEM, The 4th International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC4), 2014 年 5 月 8 日～2014 年 5 月 10 日、Hamamatsu

M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Sameshima, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and N. Tanaka, Spatial and Temporal Coherences in Spin-Polarized Transmission Electron Microscopy, The 4th International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC4), 2014 年 5 月 8 日～2014 年 5 月 10 日、Hamamatsu

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 日

～2014年3月30日、東海大学湘南キャンパス

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, 2014年12月2日～2013年12月6日、Sheraton Kona (Hawaii)

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、スピンドル偏極パルス TEM、日本顕微鏡学会第57回シンポジウム、2013年11月16日～2013年11月16日、ウヅクあいち(名古屋市)

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、スピンドル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日～2013年9月28日、徳島大学常三島キャンパス

桑原真人、楠総一郎、南保由人、鮫島健輔、齋藤晃、宇治原徹、竹田美和、中西彊、田中信夫、スピンドル偏極パルス同期 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日～2013年5月22日、ホテル阪急エキスポパーク(吹田市)

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 (招待講演)、2012年7月30日～2012年8月2日、Phoenix (U.S.A.)

M. Kuwahara, S. Kusunoki, K. Saitoh, T. Ujihara and N. Tanaka, Spin-polarized TEM using a NEA photocathode, The 3rd International Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations (AMTC3), 2012年5月9日～2012年5月11日、岐阜

桑原真人、楠総一郎、宇治原徹、浅野秀文、竹田美和、中西彊、齋藤晃、田中信夫、スピンドル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日～2012年5月16日、つくば国際会議場

21 田中信夫、桑原真人、楠総一郎、浅野秀文、宇治原徹、齋藤晃、竹田美和、中西彊、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日～2012年5月16日、つくば国際会議場

22 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 and analysis of sub-picosecond dynamics, The 3rd Banff Meeting on Structural Dynamics

Ultrafast Dynamics with X-Ray and Electrons (招待講演)、2013年2月17日～2013年2月20日、Banff (Canada)

〔図書〕(計1件)

N. Tanaka, Imperial College Press, Scanning Transmission Electron Microscopy of Nanomaterials: Basics of Imaging and Analysis, 2014, 571

〔産業財産権〕

出願状況(計2件)

名称：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：同上

種類：特許

番号：特許 2012-508141

出願年月日：2013年1月10日

国内外の別：外国

名称：スピンドル偏極測定装置

発明者：桑原真人、田中信夫、齋藤晃、宇治原徹

権利者：同上

種類：特許

番号：特許 2014-208345

出願年月日：2014年10月9日

国内外の別：国内

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

なし

6. 研究組織

(1) 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

(2) 研究分担者

齋藤晃(SAITOH Koh)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授

研究者番号：50292280