

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25600103

研究課題名(和文)小角電子線散乱法を用いた定量電磁場解析法の開発

研究課題名(英文)Development of quantitative analysis method of electromagnetic fields based on small-angle electron scattering experiments

研究代表者

戸川 欣彦(Togawa, Yoshihiko)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：00415241

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、“小角電子線散乱法”の電磁場定量解析法として潜在能力を最大限引き出すことを目標に、小角電子線散乱データを用いた電磁場イメージング法の開発を進めた。小角電子線散乱法を用い、キラル磁気秩序などの先端磁性材料における定量的電磁場解析を行い、微細磁気構造の解明に成功した。本手法は、磁性人工格子・スピントロニクス材料・誘電材料などに形成される微細で微弱な磁気・誘電構造(電磁場分布)の定量解析に活用されるであろう。

研究成果の概要(英文)：We have developed the imaging method of electromagnetic fields based on the data analysis of small-angle electron scattering experiments, which have significant advantages in quantitative detection of electromagnetic field distributions. Using small-angle electron scattering experiments, we clarified very fine magnetic structures of chiral magnetic orders uniquely formed in chiral helimagnets, which are one of promising materials for the next-generation spin electronics. The present methods will be utilized as fundamental method to perform quantitative analysis of electromagnetic field distributions or fine magnetic/dielectric structures in artificial magnetic lattice, spin electronics, or dielectric materials.

研究分野：電子顕微鏡、物性科学

キーワード：電磁場解析 小角電子線散乱法 磁性人工格子 スピントロニクス材料 電磁場イメージング法

### 1. 研究開始当初の背景

物質中の電磁場を直接観察すること”は物質科学やエレクトロニクス研究において重要な意義をもつ。電子線は物質内外の電場や磁場分布に応じて偏向される。この偏向は電子線の波としての位相変化を意味し、例えば電子線ホログラフィーでは電子線の干渉効果を用いて位相変化の空間分布を相対的に計測し、物質内外の電磁場を可視化する。

一方、電子線の偏向は“逆空間(角度空間)”において絶対的に検出されうる。電磁場による偏向は試料中の電場や磁場の強さと試料厚みに比例し、極めて小さい。例えば、10 nm 厚みの Fe 薄膜において、200 kV で加速された電子線(波長 2.5 pm)は  $1.3 \times 10^{-5}$  rad 偏向される。これは結晶(原子)格子による Bragg 回折角( $\sim 10^{-2}$  rad)に比べ、3桁近く小さい。

このように小さな電子線の偏向を精度よく検出するには、逆空間(回折)データの倍率に対応するカメラ長を大幅に拡大する必要がある。我々はこの考えのもと、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いた“小角電子線散乱法”の開発に取り組んできた。

小角散乱法はX線や中性子線ではよく知られた主要な実験手法である。電子線ではTEM開発の黎明期である1960年代にその概念が提唱され、1967年に電磁場解析への応用例が報告された。しかし、その後、文献はほぼ途絶え、近年では手法自体が忘れ去られているようである。そのため、応用研究はほとんど行われていない。

我々はTEM光学系を再検討し、通常のTEM法で用いられる最大数m程度のカメラ長を3km以上に延長することに成功した。この開発によって、従来のTEM法では不可能であった $10^{-6}$  rad台の電磁場による偏向を逆空間データとして定量的に検出することに成功した。これは検出分解能を3桁近く向上させたことになる。小角電子線散乱法は電磁場定量解析法としての新たな可能性を秘めており、この手法を駆使した応用研究を加速すべきである。

### 2. 研究の目的

独自に開発を進めている“小角電子線散乱法”の電磁場定量解析法としての意義を検討しその潜在能力を最大限引き出すことを目標に、磁性人工格子・スピントロニクス材料・誘電材料などに形成される微細で微弱な磁気・誘電構造(電磁場分布)の定量解析を行う。更に、小角電子線散乱データの定量性を生かし、位相回復法を応用した実空間電磁場分布像の再構築など、小角電子線散乱法を用いた新しい電磁場イメージング法を開発する。

### 3. 研究の方法

“小角電子線散乱法”の電磁場定量解析法として潜在能力を最大限引き出すことを目標に、次の二つの研究項目(1)小角電子線散

乱法を用いた磁性材料・誘電材料における定量的電磁場解析の応用研究、(2)小角電子線散乱データを用いた電磁場イメージング法の開発を設定し、研究を進展させた。

### 4. 研究成果

“小角電子線散乱法”の検出感度の評価を行い、電磁場定量解析法としての潜在能力を調べた。電界放出型TEMを用い電子線の空間コヒーレンスを $2 \times 10^{-7}$  radを確保しながら小角電子線散乱実験を行ったところ、 $5 \times 10^{-7}$  radの長周期構造による電子線のBragg回折を検出することができた。つまり、電子線の空間コヒーレンスを $10^{-7}$  rad台に確保し小角電子線散乱実験を行うことでそれと同程度の電子線の電磁場偏向が検出できることが明らかになった。また、ビームを絞り空間コヒーレンスを低下させた実験条件においても、検出系を工夫することにより $5 \times 10^{-6}$  rad程度の電子線の電磁場偏向を検出することができることがわかった。

また、詳細なデータ解析を行うことにより、物質からの小角電子線散乱データでは散乱強度の微細な変調が検出されることが明らかになった。これらの発生因子を同定しフィルタリングすることは、物質内外の電磁場分布の定量解析を行うために重要となる。この点に関して、小角電子線散乱データの数値計算プログラムを作製し、実験データとの定量的比較を行えるようにした。例えば、磁性体の人工格子に対して、Bragg回折および磁気散乱による基本的な偏向に加えて、試料形状や分布などに伴って強度変調が再現されることが分かった。

これらの実験データは小角電子線散乱データを用い位相回復法を応用した実空間電磁場分布像の再構築の適用範囲を考察する上で重要な知見である。位相回復法の最適アルゴリズムの開発など、小角電子線散乱法に基づく電磁場イメージング法を新たに開発するうえで有用な基礎データとなる。

小角電子線散乱法を用いた磁性材料・誘電材料における定量的電磁場解析法を研究開発するために、小角電子線散乱法に対する光学系最適化を進めた。実験において小角電子線散乱法の性能を最大限活用するには、制限視野絞りの位置やサイズなどのハード面の入念な検討、また、ソフト面でのレンズ条件・光軸調整などの光学系安定制御が重要であることがわかった。

小角電子線散乱法と従来の電子線電磁場イメージング法との検出感度などの性能比較を行った。特に、英国・グラスゴー大学との共同研究により、収差補正型走査型電子顕微鏡法と分割型検出器(8分割型及びピクセル型)を組み合わせた世界最高性能を誇る位相差コントラスト法(DPC法)との比較を行った。小角電子線散乱法では $10^{-7}$  rad台の信号検出が可能であるが、後者では $10^{-6}$  rad台に留まることがわかった。この違いは両者で

用いる電子線の空間コヒーレンスの違いに起因しており、開発を進めている小角電子線散乱データからの位相回復法の優位性を間接的に検証できたといえる。また、小角電子線散乱法にピクセル型検出器を活用することで時間分解能や定量性の向上が可能であることがわかった。応用の一例として、キラル磁性材料  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  や  $\text{FeGe}$  におけるキラル磁気構造の精密磁気構造解析を行った。高調波成分の検出などキラル磁気構造を理解する上で重要な実験データを取得することに成功した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 8 件)

戸川欣彦、キラル磁性のスピントロニクスへの応用、化学工業 67(3), 1-8 (2016), 査読無.

<http://ci.nii.ac.jp/naid/40020747522>

戸川欣彦、キラル磁性を用いた革新的情報処理磁気デバイスの創製、ケミカルエンジニアリング 61(1), 1-6 (2016), 査読無.

<http://ci.nii.ac.jp/naid/40020702075>

Y. Togawa, T. Koyama, Y. Nishimori, Y. Matsumoto, S. McVitie, D. McGruther, R. L. Stamps, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, I. G. Bostrem, V. E. Sinitsyn, A. S. Ovchinnikov, J. Kishine, Magnetic Soliton Confinement and Discretization Effects Arising from Macroscopic Coherence in a Chiral Spin Soliton Lattice, Physical Review B 92, 220412(R) (2015), Editors' Suggestion, 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.92.220412

戸川欣彦、キラルソリトン格子におけるスピン位相コヒーレンスの制御、まぐね 10(4), 199-205 (2015), 査読無.

<http://ci.nii.ac.jp/naid/40020555688>

Y. Togawa, T. Koyama, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, S. A. Ovchinnikov, J. Kishine, Chiral Soliton Lattice in Chiral Magnetic Crystal  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ , Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy 61, S34-S36 (2014), 査読有.

DOI: 10.2497/jjspm.61.S34

Y. Togawa, Small-angle electron scattering of magnetic fine structures, Microscopy 62, S75-S86, (2013), 査読有.

DOI: 10.1093/jmicro/df007

戸川欣彦、小山司、森茂生、電子線小角散乱法を用いた磁気的微小構造解析、日本結晶学会誌「最近の研究から」55 巻 2 号, 121-127 (2013), 査読無.

DOI: 10.5940/jcrsj.55.121

戸川欣彦、小角電子線散乱・カイラルら

せん磁気秩序・カメラ長、日本結晶学会誌「クリスタリット」55 巻 2 号, 161-162 (2013), 査読無.

<http://www.crsj.jp/database/crystalliteX.html#N0918>

〔学会発表〕(計 25 件)

Y. Togawa, Chiral Soliton Lattice in a Monoaxial Crystal of Chiral Magnet  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ , University of Zaragoza ICMA Seminar (招待講演), 2016/3/4, University of Zaragoza, Zaragoza, Spain

戸川欣彦、キラルソリトン格子とスピン位相コヒーレンス、日本磁気学会 第 205 回研究会/第 56 回スピントロニクス専門研究会(招待講演), 2015/12/14, 中央大学駿河台記念館(東京都・千代田区)

戸川欣彦、単軸性キラル磁性体の物性と機能、物性研短期研究会「スピン系物理の深化と最前線」(招待講演), 2015/11/17, 東大物性研究所本館(千葉県・柏市)

戸川欣彦、電子線小角散乱法を用いた磁気微小構造解析、2015 年度超高分解能顕微鏡法分科会 合宿研究会「電子顕微鏡の可能性を議論しよう」(招待講演), 2015/9/25, KKR ホテル金沢(石川県・金沢市)

Y. Togawa, Chiral soliton lattice in a chiral monoaxial crystal  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ , University of Leeds CMP Seminar(招待講演), 2015/9/12, University of Leeds, Leeds, UK

戸川欣彦、キラル磁気秩序におけるスピン位相コヒーレンス制御、日本学術振興会 Core-to-Core プログラム「散逸ゆらぎ制御ナノ電子フォトン国際研究拠点」2014 年オープンセミナー(招待講演), 2014/12/11, 東京大学本郷キャンパス(東京都・文京区)

戸川欣彦、カイラルスピンソリトン格子におけるスピン位相コヒーレンスの制御、2014 年物性セミナー(招待講演), 2014/7/4, 東京大学駒場キャンパス(東京都・目黒区)

戸川欣彦、カイラル磁性のスピントロニクス応用への展望、日本磁気学会スピントロニクス専門研究会(招待講演), 2014/3/26, 中央大学駿河台記念館(東京都・千代田区)

戸川欣彦、電子顕微鏡法を活用したスピントロニクス研究 - 次世代スピントロニクスの創成に向けて -、日本顕微鏡学会関西支部「若手の会」(招待講演), 2013/12/8, KKR ホテルびわこ(滋賀県・大津市)

Y. Togawa, Chiral Spin Soliton Lattice in Monoaxial Chiral Magnet, Dalhousie University Seminar (招待講演),

2013/11/12, Dalhousie University,  
Halifax, Canada

6 . 研究組織

(1)研究代表者

戸川 欣彦 (TOGAWA YOSHIHIKO)  
大阪府立大学・工学研究科・准教授  
研究者番号 : 00415241