

研究終了報告書

「スパース位相回復によるコヒーレント軟 X 線オペランド計測」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：山崎 裕一

1. 研究のねらい

近年、持続可能社会の実現に向けたエネルギー・環境問題の観点から、触媒材料、電池材料、省電力デバイスの新規開発や高度化への社会的要請が高まっている。その中であって、実際に材料・デバイスが動作している最中の電子状態変化を観測するオペランド(動作環境下)計測は、特性発現に機能する物性情報を直接的に観測でき、新規デバイス開発・機能性材料開発に有用な設計情報を得られる計測手法として期待される。

本研究では新しいオペランド計測技術として放射光施設や X 線自由電子レーザー(XFEL)から発生するコヒーレント(可干渉)な軟 X 線による実空間イメージング技術を開発してきた。本手法は、高い時空間分解能、元素選択性、スペクトル計測といった特長があるが、計測装置開発の難しさや計測データから実空間像に戻すための解析技術の難しさがあった。そこで、スパースモデリングなどの情報処理技術を活用した解析手法を新たに開発し、コヒーレント軟 X 線回折による実空間可視化技術の高度化を進めてきた。特に、精度の低い計測データや画像の一部が欠損した計測データなどから、機能性発現に関与する活性領域の情報を抽出できるような解析手法の開発を目指してきた。

その実現ために、計測対象のスパース性に着目した位相回復アルゴリズム(スパース位相回復法)を開発し、高精度な実空間イメージング技術を開拓することに取り組んだ。この解析方法は、スパースモデリングに基づく LASSO を活用した位相回復法であり、解析の実効性を高めるためには計測対象のスパース性を見出す必要がある。例えばスピントロニクスデバイスへの応用が期待される磁気スキルミオンに対しては、試料全体の磁気モーメント空間分布に着目するのではなく磁気スキルミオンの中心位置のみに着目すると計測対象はスパース情報になりスパース位相回復法が有効に働く。他にも強磁性体の磁気ドメインやクラスター状態の可視化に対しては、画像微分することでドメイン境界がスパース情報となりスパース位相回復法が有効になると考えられる。また、デバイスのオペランド計測に対しては、活性領域のスパース性に着目した機械学習を行うことでデバイス特性の情報を抽出できると期待される。実際に、モデル試料を用いたコヒーレント軟 X 線回折実験を行い、本提案の解析法の実効性を確かめ、精度を向上させていく。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究では、計測と情報の融合アプローチとして、計測アプローチでは新しいコンセプトのコヒーレント軟 X 線顕微鏡を一から開発し、情報アプローチではスパースモデリングを活用した位相回復アルゴリズムの開発に取り組んだ。複数の顕微手法を簡便に切り替えて試料を観測できる軟 X 線顕微鏡のシステムを構築し、数十ナノメートル程度の空間分解能を有することを

実証した。また、回折図形から実空間像を再構成する位相回復アルゴリズムにおいて、計測試料の事前情報をスパースモデリングによって組み入れた、スパース位相回復法を開発し、計測ノイズや情報欠損を含むような低精度の計測データからも必要な情報を抽出できる解析手法を確立した。これらの、計測装置と解析手法を用いて、軟 X 線回折の干渉による位相や光渦の観測、トポロジカル磁性体や強磁性体材料において熱揺らぎによって安定化するトポロジカル安定性や磁気スキルミオンの粒子半径の変化に伴う構造相転移現象など、新しい物性現象の観測に成功した。

(2) 詳細

研究テーマ A: コヒーレント軟 X 線顕微鏡の開発

コヒーレント軟 X 線を使い、走査型顕微鏡、回折型顕微鏡、投影型顕微鏡、結像型顕微鏡などの顕微手法を容易に切り替えられる新しいコンセプトのコヒーレント軟 X 線顕微鏡を開発した。高精度に実空間イメージングを行うために、平行ビームを試料に入射して得られる回折図形(フラウンホーファー回折)から実空間図形を再構成する X 線回折顕微鏡に加えて、フレネルゾーンプレートによって生成される集光・発散ビームを試料に入射して得られる回折図形(フレネル回折)から実空間を観測するための X 線顕微鏡を開発した。フレネルゾーンプレートの明視野における透過波観測から計測対象の概形を取得し、平面波照射による暗視野領域の回折図形から高分解能の時空間情報を計測することを目指すものである。それらの異なる条件で観測された回折図形の情報を統合することで、より高精度な実空間像を高効率に再構成できることが期待される。

1 年次に真空チャンバーを調達し、2 年次には顕微鏡の構成要素となるピエゾステージやフレネルゾーンプレートなどを導入し、高真空中で軟 X 線顕微鏡を構築した(図 1)。2 年次から 3 年次にかけて、高エネルギー加速器研究機構の放射光施設 Photon Factory において装置の立ち上げ実験を行った。3 年次の後半から装置の性能を評価するために分解能評価用のテストチャートを用いた評価実験を行い、走査型顕微鏡と投影型顕微鏡で数百 nm、回折型顕微鏡で数十 nm の空間分解能を有していることを実証した。カメラ長や試料位置、フレネルゾーンプレートを切り変えることによって倍率と視野を可変にできることも確認した。これによって、低倍率と高倍率を容易に切り替えられる軟 X 線顕微鏡システムを構築することができた。さらに、タイコグラフィーやトモグラフィ計測、電場やマイクロ波を照射できる試料環境を整備した。

本装置の評価実験も兼ねて、軟 X 線干渉(インラインホログラフィ)計測による軟 X 線光渦の生成と評価を行った。光渦は波面がらせん状になった軌道角運動量を有する量子ビームである。可視光や電子線では光渦の観測や利用実験が盛んに行われているものの、軟 X 線領域の光渦実験は研究例が少なかった。本研究では、フォーク型グレーティングから生成される軟 X 線光渦に着目し、光渦と参照波との干渉を観測することで光渦の位相分布を決定することを目指した。フレネルゾーンプレートの集光点より下流にフォーク型グレーティングを配置し、光渦になった回折光とグレーティングを通過していない軟 X 線を干渉させることでホログラフィ像を取得した。得られた回折図形を解析することで光渦の位相分布を可視化できることを示した。本手法は、試料にトポロジカル欠陥がある場合には、光渦の位相特異点として高精度に観測できることを示唆しており、磁気スキルミオンの融解過程における欠陥のダイナミクスを

高感度に観測できる手法として有力であることが分かった [Phys. Rev. Applied 14, 064069 (2020)]。

研究テーマ B: スパース位相回復法の開発

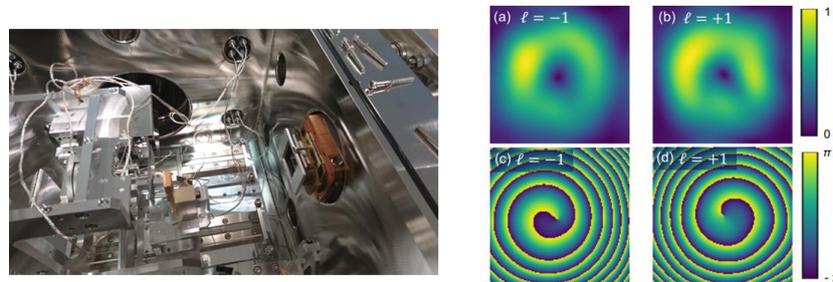


図1. (左)開発した軟X線顕微鏡真空チャンバー内の写真と
(右)本装置で観測した軟X線光渦の強度分布と位相像。

高空間分解能な実空間像を観測するには、高い開口数を得られる回折型顕微鏡が有効であるが、実空間像を再構成するために失われた位相情報を反復的フーリエ変換法によって取得する必要がある。本研究では、計測対象の事前情報を L1 正則化項として組み入れたスパースモデリングに基づく位相回復法を開発した。磁気スキルミオンのような準粒子的な磁気構造体が試料に存在しているとき、スパースに存在するという事前情報を位相回復に L1 正則化の罰則項として考えることで、情報欠損やノイズを多く含む回折図形からの必要な物性情報を抽出できることが明らかになった。アルゴリズムを実証するためにモデル画像を用いたシミュレーションを行った(図2)。完全な回折図形からは従来の位相回復アルゴリズムで実空間像が再構成できるが、ノイズや情報欠損を加えた回折図形からは、劣決定系の問題になるため実空間像の再構成が上手くいかない。しかし、磁気スキルミオンがスパースに存在するという正則化を加え、位相回復アルゴリズムを行うと情報欠損やノイズを含むデータからも磁気スキルミオンの位置情報が抽出できることが明らかになった。高周波や低周波の情報が欠損しても磁気スキルミオンやサポート形状に対する事前情報があるために、過学習することなく解を推定できたことになる。この結果については、Journal of the Physical Society of Japan. 88 [2] (2019) 024009 に掲載された。このスパース位相回復アルゴリズムを基として、L1 正則化だけではなく、TV 正則化やグループ LASSO による位相回復アルゴリズムの開発も行っている。これによって磁気ドメイン構造を X 線自由電子レーザーのシングルショット計測することなどへの応用展開が期待される。

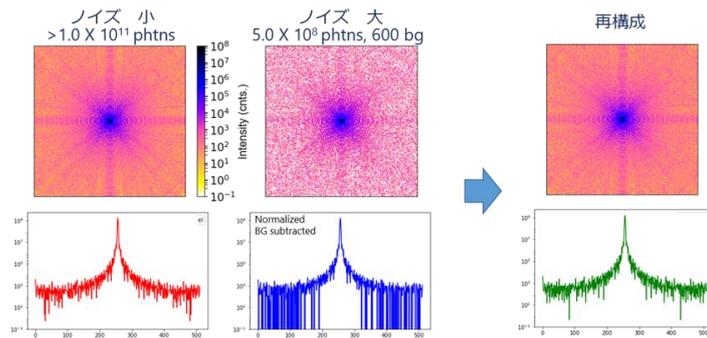


図2: スパース位相回復アルゴリズムのシミュレーション。
ノイズが大きいデータでも本解析手法により、ノイズが少ない時と同程度のデータを再現できる。

スパース位相回復アルゴリズムでは、磁気スキルミオンの存在率のような未知なパラメータは、ハイパーパラメータと関連付けられるが、これを決定するにはハイパーパラメータをスキャンしながら、交差検定を行い one-standard 則と呼ばれる経験則によって最適化するという解析手法を取っていた。この解析には時間を有するため、ハイパーパラメータを効率的に決定する解析手法の開拓を試みた。磁気スキルミオンを計測対象として想定される濃度や半径などの条件を振ったシミュレーションデータを生成し、それに対して求めるハイパーパラメータとの関連性を機械学習によって探求した。この結果、ハイパーパラメータはある種の規則性を持って決定できることを発見し、これによって解析時間が大幅に短縮できることを示した。この規則性は、ある条件下において成立ことが解析的に示された。本成果については、Yoshinori Nakanishi-Ohno and Yuichi Yamasaki, J. Phys. Soc. Jpn. 89, 094804 (2020) に掲載された。

研究テーマ C: 機能性材料のオペランド計測

共鳴軟 X 線小角散乱とコヒーレント軟 X 線顕微鏡を使ってトポロジカル磁性体や強磁性体薄膜の観測を行った。絶縁体で磁気スキルミオンが発現するマルチフェロイクス物質 Cu_2OSeO_3 では、電場や一軸応力によって磁気スキルミオンが生成・消滅することを Cu の L 吸収端における共鳴軟 X 線散乱で観測した[Y. Okamura, Y. Yamasaki et al., Phys. Rev. B 96, 174417 (2017)]。磁気スキルミオンが三角格子を形成することが多いが、本物質ではある温度・磁場領域において磁気スキルミオンが四角格子を形成することを見出した[R. Takagi, Y. Yamasaki et al., Nat. Comm. 11, 5685 (2020)]。共鳴軟 X 線散乱は、磁気散乱を高感度に観測できることから 1 次の反射に加えて、2 次の高次磁気反射を観測することができた。高次の磁気散乱は磁気スキルミオンの内部磁気構造がサイン波からずれることによって発現することから、磁気スキルミオン粒子の半径が変化することに対応する。高次反射強度の変化に伴って三角格子と四角格子の間で構造相転移が起きていることから、磁気スキルミオンの半径が構造相転移の重要な要因になっていることを示唆している。また、カイラルソリトン格子が発現する CrNb_3S_6 では、磁場を掃引することでカイラルソリトン格子の間隔が変化し、高次反射の振る舞いが理論曲線を良く再現していることを観測した。低温になるほど理論曲線と良く一致する振る舞いを示す一方で、高温になるとカイラルソリトンの数が変化しにくくなる様子が観測された。この結果は、熱揺らぎによってカイラルソリトンの内部磁気構造の変形が許容されるようになりトポロジカル数に対応するカイラルソリトン数の変化が抑制されたことで説明さ

れる。つまり、熱揺らぎがトポロジカル安定性をサポートしている現象であることが明らかになった[T. Honda, Y. Yamasaki et al., Sci. Rep. 10, 18596 (2020)]。

コヒーレント軟 X 線回折顕微鏡による実空間像の観測も行った。磁気スキルミオンが比較的高温で発現する FeGe では、非対称なアパーチャー上に形成した薄片を設置することで効率的な位相回復アルゴリズムによる実空間像の再構成が可能であることを示した[V. Ukleev, Y. Yamasaki et al., Quantum Beam Science 2, 3 (2018)]。2 種類の磁性イオンを含む磁気スキルミオン物質である $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_4$ においては、Co と Mn のそれぞれの吸収端で元素選択的な実空間イメージングを実証した[V. Ukleev, Y. Yamasaki et al., Physical Review B. 99 [14] 144408 (2019)]。磁気スキルミオンが発現する強磁性薄膜 CoPt では、インラインホログラフィ型の軟 X 線顕微鏡で磁区を観測することにも成功し、実空間と逆空間の観測を計測領域によって使い分けて観測することができた。

また、軟 X 線顕微鏡で観測できる物性情報に関しても再考を行った。特に、時間反転対称性の破れに伴う物理量観測について考察した。強磁性体では、磁気モーメントが時間反転対称性を破るため、X 線円二色性が発現し X 線顕微鏡で観測することが可能になる。一方で、反強磁性体では磁気モーメントが相殺してしまうために、X 線円二色性は発現しないと考えられる。しかし、ある種の時間反転対称性の破れた反強磁性体においては、 T_z 項と呼ばれる磁気双極子演算子で非ゼロになる物理量が観測可能になり、トポロジカルホール効果などの物理現象と関連していることを理論的に明らかにした[Y. Yamasaki et al., JPSJ 89, 083703 (2020)]。これまであまり考慮されていなかったが物性と大きく関与している T_z 物理量が、軟 X 線顕微鏡で観測可能であることを示唆しており、今後、新たな物性研究への応用展開が期待される。

3. 今後の展開

本研究を通じて、コヒーレント軟 X 線を使った高い空間分解能を有する顕微鏡を開発することができた。実空間・逆空間の切り替えや、視野・倍率可変、干渉顕微鏡の特性を活かし、物質・材料研究を展開していく。観測対象とする物性現象を拡充するためには、試料環境の制御が求められる。温度や磁場、電場・電流・マイクロ波、光照射など多彩な外場制御環境を整え、汎用性の高く、多角的活用できる計測装置にしていく。また、スパース位相回復法は、磁気スキルミオンのような粒子がスパースに存在する場合だけでなく、磁区などの空間変化がスパースである系に対しても有効であり、アルゴリズム拡張していくことが重要となる。

4. 自己評価

本研究の当初目標である先端計測手法と高度情報処理技術の融合という観点では、世界に類を見ない測定装置を一から開発し、先端的な研究成果を得られた点、スパースモデリングを活用した解析手法の開拓と実証ができた点を考慮すると、研究目的は十分に達成したと評価できる。先端計測と高度情報を融合して初めて創出した学理という点についても、その先駆けとなる研究成果が得られており、今後の発展が大いに期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 17件

1. Sparse Phase Retrieval Algorithm for Observing Isolated Magnetic Skyrmions by Coherent Soft X-ray Diffraction Imaging, Y. Yokoyama, T. Arima, M. Okada, Y. Yamasaki, J. Phys. Soc. Jpn, 88 [2], 024009 (2019)

コヒーレント軟 X 線回折図形から実空間像を再構成位相回復アルゴリズムにおいて、スパースモデリングに基づくL1 正則化を導入し、ノイズや情報欠損を含むデータからも効率よく情報を抽出できることを示した。

2. Augmented magnetic octupole in Kagome 120-degree antiferromagnets detectable via x-ray magnetic circular dichroism, Y. Yamasaki, H. Nakao, T. Arima, J. Phys. Soc. Jpn, 89, 083703 (2020)

X 線円二色性は磁気モーメントが揃っている強磁性体において発現するが、ある種の時間反転対称性が破れた反強磁性体においては、磁気モーメントが相殺していても X 線円二色性が発現することを理論的に示した。X 線顕微鏡で観測できる物理量の可能性を上げた。

3. Topological Metastability Supported by Thermal Fluctuation upon Formation of Chiral Soliton Lattice in CrNb3S6, T. Honda, Y. Yamasaki (責任著者), H. Nakao, Y. Murakami, T. Ogura, Y. Kousaka, and J. Akimitsu Scientific Reports. 10, 18596 (2020)

カイラル磁性体 CNb3S6 において共鳴軟 X 線小角散乱によってカイラルソリトン格子に伴う磁気散乱を観測することに成功し、熱揺らぎがトポロジカル数の変化を抑制する現象を明らかにした。

(2) 特許出願

なし

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. (研究会) 第十回放射光学会若手研究会「放射光×情報」開催

2. (招待講演)「スパースモデリングによる X 線回折データからの情報抽出」山崎裕一、2019 年 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会 シンポジウム「インフォマティクスが創る新しい材料科学とその実用化」

3. (招待講演)「スパースモデリングを活用したコヒーレント軟 X 線回折イメージングの解析手法」、山崎裕一、放射光学会 JSR2020 企画講演 1『情報科学を駆使した最先端放射光イメージング』

4. (解説記事) コヒーレント回折イメージングにおけるスパース位相回復アルゴリズム、山

崎裕一、日本結晶学会誌 62, 1 (2020)