

走査型 X 線顕微鏡を用いたマルチスケール構造物性研究

大隅寛幸

理化学研究所放射光科学総合研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

有馬孝尚

東京大学新領域創成科学研究科 〒277-8561 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

理化学研究所創発物性科学研究センター 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

要旨

走査型 X 線顕微鏡に偏光 X 線回折の実験技術を融合させると、原子配列レベルの構造とメソスコピックな高次構造とを、長さスケールの隔たりを越えて対応付けることができる。本稿では、カイラリティドメインと反強磁性ドメインの観察を例に、階層間で継承される対称性という構造的特徴を、回折現象の偏光依存性に着目して計測する手法を紹介する。階層を繋ぐ普遍性の探求において、階層を跨いだ構造物性研究の果たす役割は少なくないと期待される。

1. はじめに

X 線回折現象の発見により、原子をビルディングブロックとする構造の解析が可能となり、物質機能の発現機構を原子配列と関連付けて議論する研究が、様々な分野において展開され多くの成功を収めてきた。現在では、高輝度放射光を利用して電子密度レベルの精密構造解析が可能であり、大型計算機を利用した計算物質科学研究の発展とも相俟って、電子物性の議論も盛んに行われている。このような回折実験による構造解析では、試料の均質性が結果の分解能や精度を左右するため、ドメイン構造や組織構造といった不均質な高次構造を含まない状況で測定が行われる。しかしまた、高次構造も物質機能と深く関わっていることはよく知られた事実でもある。

メソスコピック領域の構造は、電子顕微鏡や種々の走査型プローブ顕微鏡を用いて観察できるが、ミクロスコピックな原子配列と対応付けることはそれほど簡単ではない。電子後方散乱回折 (EBCD) や 3 次元 X 線回折顕微鏡 (3DXDM)¹⁾ といった手法を用いれば、複雑な材料組織中の結晶方位の同定や応力の評価が結晶粒単位で可能ではあるが、結晶粒内に形成されるドメイン構造の観察に応用することは難しいと予想される。また、原子分解能を持つ顕微鏡も存在するが、広い視野の観察には適さず留意事項も多いので、この用途への活用は現実的には難しいと考えられる。本稿では、放射光の偏光特性を利用してドメイン間にコントラストを与える方法を説明し、走査型 X 線顕微鏡と組み合わせてカイラリティドメインや反強磁性ドメインを観察した例を紹介しながら、階層を跨いだ構造物性研究の特徴を明らかにしていく。

2. 階層構造と対称性

物質を構成する要素間の協同現象が、要素単体からは予想されない物質機能を生み出すことがある。その典型例が相転移現象で、発生する秩序状態を特徴づける物理量は秩序変数と呼ばれ、発生する秩序状態が対称性の破れを伴う場合にはドメイン構造が現れる。このとき、ドメイン構造を構成するバリエーションは相転移で失われた対称操作によって互いに移り変わり、発生する秩序配列も対称性から強い制約を受けることが予想される。このような群論的考察は、磁気構造解析などで重要な役割を果たす²⁾。

メソスコピックなドメイン構造は、協同現象によって現れた秩序相を、ドメインを単位として粗視化した秩序変数の空間パターンに外ならない。この物質構造に現れる階層性は、主要な働きをする相互作用のクロスオーバーとも符合して、原子配列に関する知見だけからマクロ物性を予測することを困難にしている。そのため、物質機能の発現機構のシームレスな理解には、階層内で閉じた構造研究だけでは不十分であり、階層を跨いだ構造研究が重要となる。その際、長さスケールが異なる階層間で継承可能な構造的特徴である対称性に注目すると、相互の関係性が捉え易くなる。

3. 走査型顕微測定と偏光 X 線回折

原子配列における対称性は、回折像の対称性を調べることで明らかにされる。対称性を反映する回折線に着目して走査型顕微測定を行えば、メソスコピックなスケールの組織構造と原子配列レベルの対称性を対応付けることが可能である。これに、偏光 X 線回折³⁾の実験手法を融合させる

ことで、バリエーション間にコントラストが与えられ、ドメイン構造の観察が実現される。実施例の紹介に入る前に、走査型顕微測定と偏光 X 線回折について概観してみることにする。

3.1 走査型顕微測定

集光効率が高く色収差が無い Kirkpatrick-Baez (KB) ミラーを用いてプローブ光を形成し、微動ステージを備えた回折計により試料を走査しながら回折線を測定するセットアップを使用する。集光素子の選定は、共鳴効果の利用を念頭に置いたものとなっている。観察像の空間分解能は必要とされるフラックスにも依るが、我々が立ち上げた装置では $100 \times 100 \text{ nm}^2$ のスポットサイズが $4 \times 10^{10} \text{ photons/s}$ のフラックスで達成されている。しかし、シグナルが微弱な反強磁性ドメインの観察等の用途では、この値もそれほど余裕がある訳ではない。現状では、他の走査型プローブ顕微鏡と比べて空間分解能は一桁程度低いが、反強磁性の可視化能力はその欠点を補って余りある。実際に使用した KB ミラーについては、文献⁴⁻⁶⁾に詳しく説明されている。

3.2 偏光 X 線回折

X 線が原子に束縛された電子によって散乱される場合、散乱振幅がごく僅かに異方的になることがある。ATS (Anisotropy of the Tensor of Susceptibility) 散乱^{7,8)}や磁気散乱⁹⁻¹²⁾では、この効果によって特徴的な偏光依存性が現れるので、その測定を通して価電子の空間配列パターンや磁気モーメントの空間配列パターンを明らかにすることができる。ドメイン観察の際に、バリエーションにコントラストを与えるのもこの異方性である。ここからは、数式を交えながら詳しく見ていくことにする。

入射 X 線の波数ベクトル \mathbf{k} と散乱 X 線の波数ベクトル \mathbf{k}' が張る散乱面に対して、電場の振動方向が垂直なものを σ 偏光、平行なものを π 偏光と呼ぶ。散乱ベクトルを定めると偏光ベクトルの方向も定まるので、散乱振幅テンソルは 2 次の正方行列として表現することができる。これを単位行列 \mathbf{I} とパウリ行列 $\boldsymbol{\sigma}$ とで

$$\begin{pmatrix} F_{\sigma\sigma} & F_{\sigma\pi} \\ F_{\pi\sigma} & F_{\pi\pi} \end{pmatrix} = F_0 \mathbf{I} + \mathbf{F} \cdot \boldsymbol{\sigma}$$

のように展開する。得られた振幅 F_0 , \mathbf{F} を使うと、散乱断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 [F_0 F_0^* + \mathbf{F} \cdot \mathbf{F}^* + \mathbf{P} \cdot (\mathbf{F} \mathbf{F}_0^* + F_0 \mathbf{F}^* - i \mathbf{F} \times \mathbf{F}^*)]$$

のように書き下すことができる。ここで、 r_0 は古典電子半径、 $\mathbf{P} = (P_{45}, P_C, P_L)$ は規格化されたストークスパラ

メータを成分とするベクトルである。必要な表式が得られたので、いくつかの特徴的な状況に触れておく。

結晶が対称心を持たない場合、例えば、カイラルな構造がこれに相当するが、複素共役な構造因子を持つ鏡像異性体間で $\mathbf{F} \times \mathbf{F}^*$ 項の符号が反転する。これを利用すると、カイラリティドメインの観察等が可能になる。

一部の構造振幅の符号が反転する場合には、 $\mathbf{F} \mathbf{F}_0^* + F_0 \mathbf{F}^*$ 項の符号が反転する。例えば、電荷散乱と磁気散乱が同じ回折条件で生じていると、このような状況が発生する。これを利用すると、反強磁性体の逆位相ドメインの観察等が可能になる。

最後に、ATS 散乱も磁気散乱もなく散乱振幅が等方的な、一般的な状況を考えてみる。散乱角を 2θ とすると、散乱振幅は $F_0 = F \cos^2 \theta$, $\mathbf{F} = (0, 0, F \sin^2 \theta)$ と表される。このとき、散乱断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 |F|^2 [1 + 2(P_L - 1) \sin^2 \theta \cos^2 \theta]$$

となり、構造因子の位相に不感であることが理解される。

4. カイラリティドメインの観察

電子の電荷とスピンの絡み合いに起因する物性が、マルチフェロイクスをはじめとする多くの分野で関心を集めている。結晶が対称心を持たない場合、電子波動関数のパリティ混成や反対称スピン軌道相互作用などが関係する新奇物性の発現が期待される。さらに鏡映対称性も失うと、結晶はカイラルとなり、右手系と左手系の鏡像異性体が存在するようになる。しかし、カイラルな無機固体物質の右手系結晶と左手系結晶を自在に作り分ける不斉結晶成長の技術は未だ確立されていない。さらに、結晶中のカイラリティドメインを観察することもできなかった。そこで、走査型 X 線顕微鏡を用いたカイラリティドメインの観察技術の開発を進めてきた。

CsCuCl₃ は室温でカイラルな結晶構造 (空間群 $P6_122$ または $P6_522$) を持つ (Fig. 1(a) 参照)。注目すべき構造は、Cu²⁺ の Jahn-Teller 効果によりひとつの対角線方向に約 20% 伸長した CuCl₆ 八面体が面共有で繋がり形成する 1 次元鎖で、伸長方向が左右どちらかの螺旋を組んで規則的に整列している。このとき、Cu の *d* 電子の空間配列も、左右どちらかの螺旋を組んでいるはずである。そこで、X 線のエネルギーを Cu *K* 吸収端に合せ、ATS 散乱によって *d* 電子の螺旋配列を調べることにした。

ATS 散乱が誘起されると、 $6_1(6_5)$ の対称性に起因する消滅則が破れ、 $00l$ ($l=6n+2$) 禁制反射が有限の振幅

$$F_0 = -\Delta F(1 + \sin^2 \theta), \mathbf{F} = \Delta F(0, \pm 2 \sin \theta, -\cos^2 \theta)$$

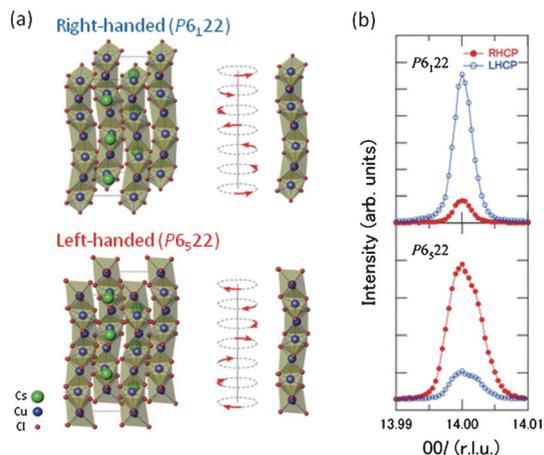


Fig. 1 (Color online) (a) Crystal structures of CsCuCl₃. (b) Scan profiles of the 0014 reflection for P₆₁22 and P₆₅22 crystals. Red and blue circles represent the intensities for P_C = +1 and P_C = -1, respectively.

を持つようになる¹³⁾。ここで、複号の+は P₆₁22 を、-は P₆₅22 を意味する。このとき散乱断面積は、

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 |\Delta F|^2 2(1 + \sin^2 \theta) [1 + \sin^2 \theta + P_L \cos^2 \theta \mp 2P_C \sin \theta]$$

となる(複号同順)。これより直ちに、00*l* (*l*=14) 反射では、右円偏光 (P_C = +1) に対しては左手系結晶 (P₆₅22) が、左円偏光 (P_C = -1) に対しては右手系結晶 (P₆₁22) が大きな回折強度を与えることが理解される (Fig. 1(b) 参照)。

00*l* (*l* = 6*n* + 2) 禁制反射が左右円偏光に対して異なる回折強度を与え、それを基に右手系結晶と左手系結晶を識別できることがわかった。そこで、左右円偏光に対する回折強度から、次のような量

$$R = \frac{I(P_C = +1) - I(P_C = -1)}{I(P_C = +1) + I(P_C = -1)}$$

を定義し反転比と呼ぶことにする。ここで、P_L = 0 に注意すると 00*l* (*l* = 14) 反射の場合は

$$R = \frac{\mp 2 \sin \theta}{1 + \sin^2 \theta} = \mp 0.83$$

となる(複号同順)。X 線が照射されている領域中に、右手系結晶だけが存在する場合は R = -0.83 となり、左手系結晶だけが存在する場合は R = +0.83 となることが期待される。右手系結晶と左手系結晶の部分が混在する場合は、両者の体積分率で重み付けられた反転比が得られることになる。

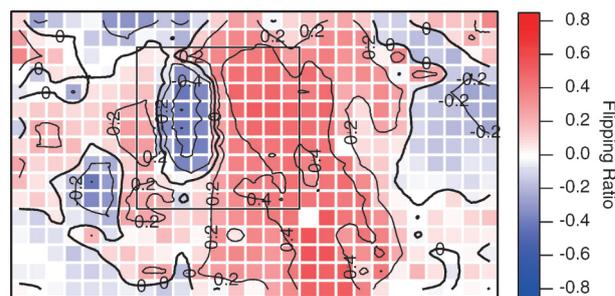


Fig. 2 (Color online) The 00*l* (*l* = 14) screw axis forbidden reflection dark field image (270 × 160 μm² with 10 μm steps). The scale is denoted by the color bar. Excerpt from¹⁴⁾.

Fig. 2 は、CsCuCl₃ 結晶の(001)劈開面で測定した 00*l* (*l* = 14) 反射の反転比の 2 次元マップである。実験は、SPring-8 の BL39XU で行った¹⁴⁾。これはカイラリティドメインの分布を観ていることに対応し、図中の赤い領域は左手系結晶、青い領域は右手系結晶であることを意味している。また、この観察像から、六方晶の *c* 面内方向の典型的なドメインサイズは数十ミクロンのオーダーであること、ドメイン境界が明瞭な優先配向を示していないことを読み取ることができる。こうなると、深さ方向の構造にも関心が持たれるようになる。

X 線は物質を透過する能力を持っているので、物質内部の構造にアクセスすることができる。物質内部への侵入深さは、X 線のエネルギーに依存して変化するが、物質を構成する元素の吸収端近傍では特に顕著な変化を示す。00*l* (*l* = 14) 反射の場合の(001)面からの侵入深さのエネルギー依存性を Fig. 3 a) に示したが、Cu *K* 吸収端近傍で実際に急激に変化している様子が確認できる。Fig. 3 b)–e) は、(001)劈開面上の同じ領域の反転比の走査顕微鏡観察像であるが、測定に使用した X 線のエネルギーが少しずつ異なる。そのため、侵入深さの変化を反映して、反転比の 2 次元マップの見え方も大きく変化している。このエネルギー依存性を上手く再現する深さプロファイルを計算機で再構成することで、表面付近のドメイン分布の 3 次元情報を得ることができる。その結果、*c* 軸方向には僅か数ミクロンの厚さしかない、パンケーキ状のドメイン形状をしていることが明らかとなった。

分子性物質の不斉合成が、医薬品や食品添加物の製造に関わる、極めて重要な技術と位置付けられている一方で、生理活性に相当する有用な物質機能が見出されていなかった無機固体物質では、不斉制御は未踏の研究領域であった。電子の電荷とスピンの自然に絡み合う不斉結晶は、近年、スピントロニクスやマルチフェロイクスの材料物質として注目されており、今回開発されたカイラリティドメインの観察技術は、その不斉結晶成長技術の確立に大きく貢献するものと期待される。

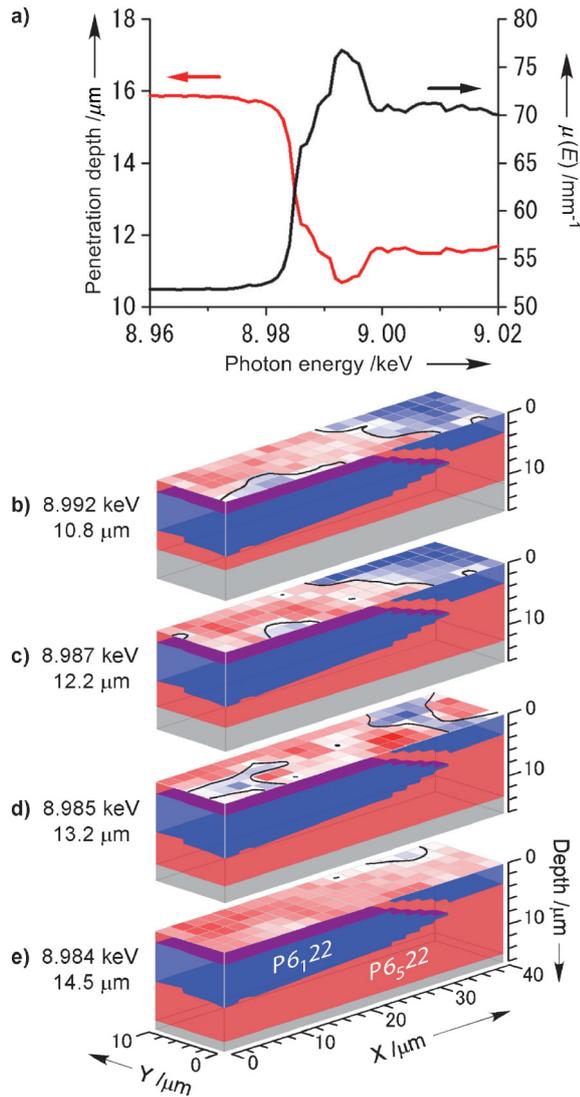


Fig. 3 (Color online) The reconstructed three-dimensional near-surface image of the chirality-domain distribution in the CsCuCl_3 crystal. a) The penetration depth of the $00l$ ($l=14$) reflection and the linear X-ray absorption coefficient of CsCuCl_3 . The top surfaces are flipping ratio maps ($40 \times 10 \mu\text{m}^2$ with $2 \mu\text{m}$ steps) obtained at different photon energies: b) 8.992 keV, c) 8.987 keV, d) 8.985 keV, and e) 8.984 keV. The penetration depths of b) $10.8 \mu\text{m}$, c) $12.2 \mu\text{m}$, d) $13.2 \mu\text{m}$, and e) $14.5 \mu\text{m}$ are schematically shown by colorization for the reconstructed tomographic image of the chirality-domain distribution. Excerpt from¹⁴⁾.

5. 反強磁性ドメインの観察

身の回りの磁石を使用した製品は、枚挙に遑がない。そのような、強磁性体の機能性材料としての重要性から、磁気光学カー効果 (MOKE) 顕微鏡や磁気力顕微鏡 (MFM) といった強磁性磁区観察技術が開発・活用されてきた。一方、磁化を持たない反強磁性体は、工業製品には極めて限定的にしか使用されていない。そのため、反強磁性磁区構造の観察技術の整備も進んでいなかった。しかし、電氣的

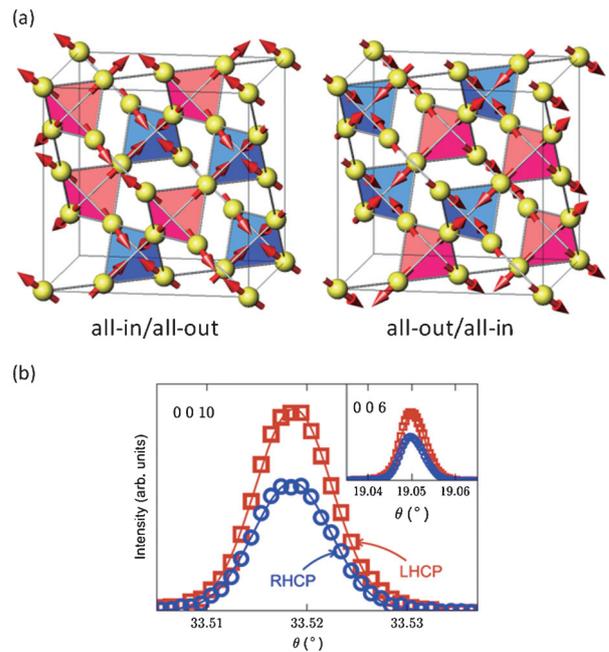


Fig. 4 (Color online) (a) All-in/all-out and all-out/all-in magnetic structures of $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$. The magnetic moments (arrows) on the vertices of tetrahedron aim their center (all-in) or the opposite direction (all-out). (b) Profiles of the forbidden 0010 reflection at the Os L_{III} edge (10.871 keV) and at 10 K in the case of left-handed (LHCP) and right-handed (RHCP) circular polarized incident beam. The inset shows the same measurement at the 006 reflection. Excerpt from¹⁶⁾.

性質と磁氣的性質を結びつける機能性材料として、反強磁性体は今後大幅に利用が増えると予想される。そこで、走査型 X 線顕微鏡を用いた反強磁性ドメインの観察技術の開発を進めてきた。

$\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ は、パイロクロア型の結晶構造 (空間群 $Fd\bar{3}m$) を持つ反強磁性体である。磁性を担う Os 原子は、頂点共有の正四面体ネットワークを形成していて、低温では、全ての磁気モーメントが中心を向いた正四面体 (all-in) と全ての磁気モーメントが反転して外側を向いた正四面体 (all-out) とが交互に並んで、all-in/all-out (AIO) 型の磁気配列を示す¹⁵⁾。その逆位相構造に相当する all-out/all-in (AOI) 型の磁気配列も同様に考えることができる。両者は平行移動操作だけでは重ならないので (Fig. 4(a) 参照)、回折実験で区別できるはずである。そこで、X 線のエネルギーを Os L_{III} 吸収端に合せ、ATS 散乱と共鳴磁気散乱によって Os の磁気モーメントの配列を調べることにした。

ATS 散乱が誘起されると、 d -glide の対称性に起因する消滅則が破れ、 $00l$ ($l=4n+2$) 禁制反射が有限の振幅

$$F_0 = \Delta F_{\text{ATS}}(1 + \sin^2 \theta), \quad \mathbf{F} = \Delta F_{\text{ATS}}(0, 0, \cos^2 \theta)$$

を持つようになる¹⁵⁾。同じ反射に対する共鳴磁気散乱の

寄与は,

$$F_0=0, \mathbf{F}=\Delta F_m(\mp 2i \sin \theta, 0, 0)$$

と表される¹⁶⁾。ここで、複号の+はAIAOを、-はAOAIを意味すると考えることにする。このとき散乱断面積は

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega} = & 2r_0^2 [|\Delta F_{\text{ATS}}|^2 [(1+P_L) + (1-P_L) \sin^4 \theta] \\ & + |\Delta F_m|^2 2 \sin^2 \theta \\ & \pm P_{45} \text{Im}[\Delta F_{\text{ATS}}^* \Delta F_m] 2 \sin \theta (1 + \sin^2 \theta) \\ & \pm P_C \text{Re}[\Delta F_{\text{ATS}}^* \Delta F_m] 2 \sin \theta \cos^2 \theta \end{aligned}$$

となる(複号同順)。 ΔF_{ATS} と ΔF_m が未知なので、このままでは絶対構造の同定はできないが、バリエントを区別することは可能である。Fig. 4(b)に示された $00l$ ($l=4n+2$) 反射強度の偏光依存性が、AIAOに対するものであるならば $\text{Re}[\Delta F_{\text{ATS}}^* \Delta F_m] > 0$ が、AOAIに対するものであるならば $\text{Re}[\Delta F_{\text{ATS}}^* \Delta F_m] < 0$ が結論される。同じ測定を磁場中冷却などにより磁気構造を限定した上で行えば、どちらか一方に絞り込むことができる。さらに、干渉法¹⁷⁾

と呼ばれる実験手法を用いて ΔF_{ATS} を調べることができるので、 ΔF_m とバリエントの対応関係もユニークに決まる。したがって、十分な予備測定が必要ではあるが、原理的には反転比から絶対構造を同定することが可能である。

$00l$ ($l=4n+2$) 禁制反射強度が左右円偏光に対して異なること、 ΔF_{ATS} と ΔF_m が未知であってもAIAOとAOAIを区別できることがわかった。そこで $00l$ ($l=10$) 反射の反転比を走査顕微測定することで、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の反強磁性ドメイン構造の観察を試みた。実験は、SPring-8のBL19LXUで行った¹⁶⁾。Fig. 5(a)-(c)は、(001), $(1\bar{1}1)$, $(\bar{1}11)$ ファセット上の反強磁性ドメインの分布、Fig. 5(d), (e)は、 $(1\bar{1}1)$, $(\bar{1}11)$ ファセット上の回折強度の分布である。Fig. 5(f)は、Fig. 5(c), (e)中のAB間の回折強度プロファイルである。これらの観察像から、ドメイン境界が明瞭な優先配向を示していて、その方向が $\{110\}$ 面に平行であることが読み取れる。実は、AIAOとAOAIは $\{110\}$ 面での鏡映で入れ替わるので、この対称操作が相転移時に失われたと考えることができる。そして、階層が異なる磁気構造とドメイン境界の対称性が矛盾しないことから、双方の構造モデルの信頼性が大きく増すことになる。さらに、Fig. 5(d), (e)と見比べると、すべての格子欠陥が磁壁を伴うのに対し、格子欠陥がないところにも磁壁が現れている

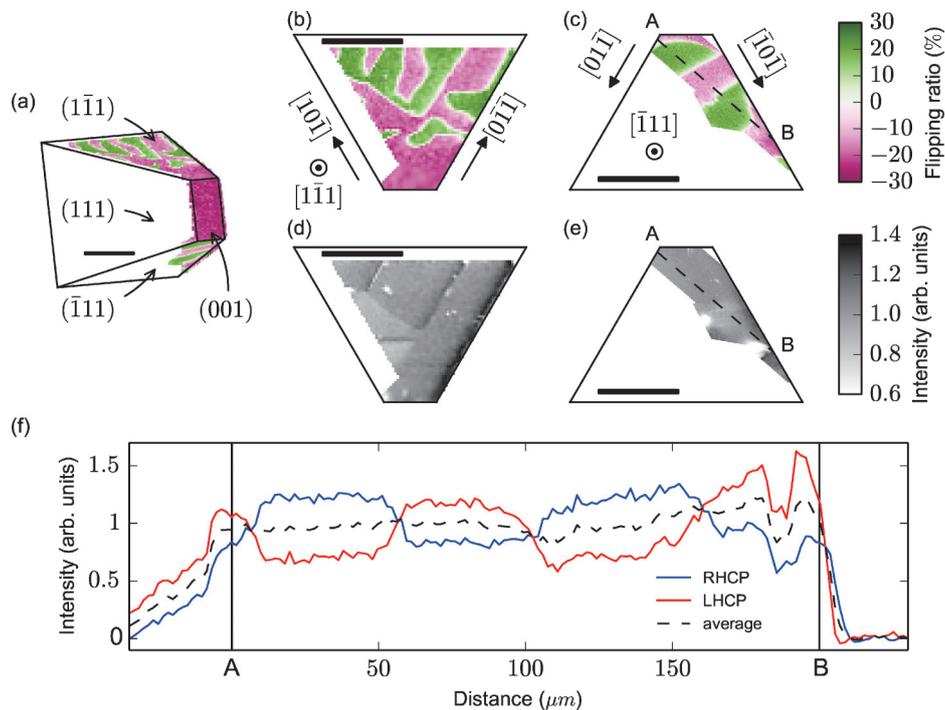


Fig. 5 (Color online) (a) FR map at the 0010 reflection, as measured experimentally by rastering the sample in a plane perpendicular to the scattering vector. The ideal crystal is outlined and the orientation of the facets is shown. Opposite signs of the FR indicate opposite pseudo-orientations of the magnetic domains (AIAO versus AOAI). (b), (c) FR maps and (d), (e) normalized intensity on the top $(1\bar{1}1)$ and bottom $(\bar{1}11)$ facets after correction of the projection, respectively. The intensity is normalized to the average value on each facet to outline the deviation from the average structure. All scale bars are $100 \mu\text{m}$ across. (f) Line scan across the bottom $(\bar{1}11)$ facet, indicated by the AB dashed line in (c), (e), for both right- and left-handed circular polarization and their average. Excerpt from¹⁶⁾.

ことが分かる。このような知見は、ドメイン構造の制御を考える際に、貴重なものとなるであろう。

反強磁性体は、磁氣的性質と電氣的性質を結びつける物質として高いポテンシャルを有することから、今後、基礎研究だけでなく応用研究も増えるものと予想される。今回開発された反強磁性ドメインの観察技術は、メゾスコピック領域で発現する物質機能の理解を促進し、実用材料研究に役立つものと期待される。さらに、階層を跨いだ構造物性研究の敷居を下げ、階層を繋ぐ普遍性の探求に大きく資するものであると期待される。

6. 終わりに

走査型 X 線顕微鏡に偏光 X 線回折の実験技術を融合させ、原子配列における対称性とメゾスコピックな構造の持つ対称性を対応付け、物質機能の発現機構のシームレスな理解を目指すマルチスケール構造物性研究について紹介した。本稿では、カイラリティドメインの観察と反強磁性ドメインの観察を取り上げたが、対応する回折線が同定されていれば、どのような秩序変数であっても、そのメゾスコピックな空間パターンを観察することができるはずである。基礎研究レベルで議論されている様々な新奇電子物性を、マクロスケールの物質機能として発現させるためには、階層を跨いだ構造物性研究を展開することによって、階層を繋ぐ普遍性を探求することが重要であると思われる。

偏光回折実験では、微弱な磁気散乱や ATS 散乱を検出するために高いフラックスが必要である。そのため、ときには仮想光源スリットの開口を大きくすることで、プローブ光のサイズが犠牲になる状況も発生する。光源のアップグレードによってこの困難が解消されると、顕微観察の高分解能化が促進され、メゾスコピックスケールの構造研究が質的に向上することが期待される。

謝辞

本研究は、理化学研究所放射光科学総合研究センターの放射光連携研究「量子秩序研究」プロジェクトの下で実施されました。高田昌樹グループディレクター（現 東北大学）、米須尚博士（現 ネブラスカ大学）、竹下聡史博士（現 物質構造科学研究所）、Samuel Tardif 博士（現 ナノサイエンス・低温学研究所）に感謝します。また、カイラリティドメイン観察は、高阪勇輔博士（現 広島大学）、秋光純教授（現 広島大学）、鈴木基寛博士（JASRI）、河村直己博士（JASRI）との、反強磁性ドメイン観察は、山

浦淳一准教授（現 東京工業大学）、廣井善二教授（東京大学）、奥山大輔博士（現 東北大学）との共同研究によって得られた成果です。本稿で紹介した放射光実験は、BL39XU（課題番号 2009A1607, 2009B1586）と BL19LXU（課題番号 20130074）で実施されました。また、本研究の一部は科研費（課題番号 19654046）と最先端研究開発支援プログラム「強相関量子科学」の助成を受けて行われました。

参考文献

- 1) H. Poulsen: *J. Appl. Cryst.* **45**, 1084 (2012).
- 2) E. F. Bertaut: *Acta Cryst. A* **24**, 217 (1968).
- 3) H. Ohsumi and T. Arima: *Advances in Physics: X* **1**, 128 (2016).
- 4) M. Takagaki, M. Suzuki, N. Kawamura, H. Mimura and T. Ishikawa: *Proc. 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, IPAP Conf. Series* **7**, 267 (2006).
- 5) H. Yumoto, K. Hirata, A. Nisawa, G. Ueno, M. Sato, J.-Y. Son, T. Koganezawa, M. Machida, T. Muro, I. Hirose, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, H. Ohashi, M. Yamamoto, Y. Watanabe and S. Goto: *Proc. SPIE* **7448**, 74480Z-1 (2009).
- 6) H. Yumoto, T. Koyama, K. Hirata, Y. Kawano, G. Ueno, A. Nisawa, T. Hikima, S. Takeshita, H. Ohsumi, K. Ito, Y. Tanaka, T. Arima, H. Ohashi, M. Yamamoto and S. Goto: *AIP Conf. Proc.* **1365**, 200 (2011).
- 7) D. H. Templeton and L. K. Templeton: *Acta Cryst. A* **36**, 237 (1980).
- 8) V. E. Dmitrienko: *Acta Cryst. A* **39**, 29 (1983).
- 9) F. de Bergevin and M. Brunel: *Acta Cryst. A* **37**, 314 (1981).
- 10) M. Brunel and F. de Bergevin: *Acta Cryst. A* **37**, 324 (1981).
- 11) K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima and H. Kawata: *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 4099 (1985).
- 12) Doon Gibbs, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills and C. Vettier: *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1241 (1988).
- 13) Y. Kousaka, H. Ohsumi, T. Komesu, T. Arima, M. Takata, S. Sakai, M. Akita, K. Inoue, T. Yokobori, Y. Nakao, E. Kaya and J. Akimitsu: *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 123601 (2009).
- 14) H. Ohsumi, A. Tokuda, S. Takeshita, M. Takata, M. Suzuki, N. Kawamura, Y. Kousaka, J. Akimitsu and T. Arima: *Angew. Chem. Int. Ed.* **52**, 8718 (2013).
- 15) J. Yamaura, K. Ohgushi, H. Ohsumi, T. Hasegawa, I. Yamauchi, K. Sugimoto, S. Takeshita, A. Tokuda, M. Takata, M. Udagawa, M. Takigawa, H. Harima, T. Arima and Z. Hiroi: *Phys. Rev. Lett.* **108**, 247205 (2012).
- 16) S. Tardif, S. Takeshita, H. Ohsumi, J. Yamaura, D. Okuyama, Z. Hiroi, M. Takata and T. Arima: *Phys. Rev. Lett.* **114**, 147205 (2015).
- 17) H. Ohsumi, Y. Murakami, T. Kiyama, H. Nakao, M. Kubota, Y. Wakabayashi, Y. Konishi, M. Izumi, M. Kawasaki and Y. Tokura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **72**, 1006 (2003).

著者紹介

**大隅寛幸**

国立研究開発法人理化学研究所放射光科学
総合研究センター 専任研究員

E-mail: ohsumi@spring8.or.jp

専門：X 線磁気散乱，物質科学

【略歴】

2000年3月慶應義塾大学大学院理工学研究科博士課程修了，博士（理学）。高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所研究機関研究員，高輝度光科学研究センター研究員，同主幹研究員，理化学研究所放射光科学総合研究センター研究員を経て，2011年4月より現職。2012年4月より関西学院大学大学院理工学研究科客員教授を兼任。

**有馬孝尚**

東京大学大学院新領域創成科学研究科
教授

E-mail: arima@k.u-tokyo.ac.jp

専門：物質科学

【略歴】

1988年東京大学大学院工学系研究科修士課程修了，1994年博士（理学）。東レ株式会社高分子研究所，東京大学理学部助手，東京大学工学系研究科助手，筑波大学物質工学系助教授，東北大学多元物質科学研究所教授を経て，2011年4月より現職。2007年4月より理化学研究所兼務。

Multiscale structural study using scanning X-ray microscope

Hiroyuki OHSUMI RIKEN SPring-8 Center, Sayo, Hyogo 679-5148, Japan

Taka-hisa ARIMA Department of Advanced Materials Science, University of Tokyo, Kashiwa 227-8561, Japan
RIKEN Center for Emergent Matter Science, Wako 351-0198, Japan

Abstract Correspondence between structures at the atomic- and meso-scales can be given by scanning X-ray microscopy integrated with polarized X-ray diffractometry. Symmetry is the common structural feature available across multiple hierarchies. This article introduces a symmetry evaluation technique based on polarized X-ray diffractometry and describes two embodiments: chirality domain observation and antiferromagnetic domain observation. Multiscale structural studies would play an important role in uncovering universality of hierarchical structure.