

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14110

研究課題名(和文) 走査電子顕微鏡による高分解能・広領域磁気イメージング法の開発と展開

研究課題名(英文) Development and expansion of scanning electron microscopy technique for wide area and high resolution magnetic imaging

研究代表者

西田 稔 (NISHIDA, MINORU)

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号：90183540

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：電子が磁性体から受けるローレンツ力を利用して走査電子顕微鏡(SEM)により簡単に磁区構造を観察できることは良く知られていたが、原理的に磁区構造の一部のみしか可視化できないなどの理由から、磁気イメージングの主流には成り得なかった。本研究では、環状電子検出器を有するSEMを用いて、ローレンツ力で偏向された電子を効率よく収集することで、試料表面に現れる磁区構造の全貌を、ごく簡単な操作・観察で明らかにできることを示した。さらに本手法は表面形状などの情報ともよく切り分けられることから、磁性体表面の磁区構造を様々な組織因子(形態、結晶方位、化学組成など)と関連付けて迅速に評価できるものである。

研究成果の概要(英文)：The magnetic domain structure can be observed easily by conventional scanning electron microscopy. However, this classic method has not been used widely because it allows observations of only limited portions of the magnetic domains. We have developed a visualization technique for the magnetic domain structure using an annular electron detector. We showed that the whole magnetic domain structure is quickly and easily acquired by our technique. Our technique has the advantage of simultaneously evaluating the magnetic domain structure and various microstructural properties, such as morphology, crystallographic orientation, and chemical composition. Therefore, we expect that the technique will be widely applicable to many magnetic materials and devices in both academic and engineering fields.

研究分野：材料組織学

キーワード：走査電子顕微鏡 磁気構造 磁気記録合金 強磁性形状記憶合金 その場観察 環状検出器 表面起伏  
モアレ

### 1. 研究開始当初の背景

電子が磁性体から受けるローレンツ力を利用して走査電子顕微鏡 (SEM) により簡単に磁区構造を観察できることは良く知られていたが、SEM 観察では原理的に磁区構造の一部のみしか可視化できないなどの理由から、磁気イメージングの主流には成り得なかった。

しかしながら、今世紀に入り SEM の進歩には目覚ましいものがあり、電界放出型電子銃の採用による高輝度化、加速電圧の極低化、様々な電子線検出器を活用等により、従来の観察対象であった2次電子による表面の凹凸情報、反射電子による組成像に加えて、チャンネリングコントラストによる結晶方位差や結晶構造変化の可視化 (ECC 像)、表面と組成の両情報の同時取得などが可能になってきた。

申請者らは CoPt や Ni<sub>2</sub>MnGa 等の強磁性合金の SEM 観察において透過電子顕微鏡で観察される磁区構造に酷似した迷路状模様が認められることに着目し、本研究を発想した。

### 2. 研究の目的

磁気構造の観察技術 (磁気イメージング) は磁性研究の根幹であり、その発展は物性発現の機構解明や材料開発において重要な役割を果たしてきた。本研究では磁性材料や磁気デバイスの磁気構造を SEM によって広領域かつ高分解能で観察する方法を提案し、その結像原理を明らかにするとともに、動的観察のための SEM 内磁場印加装置を試作・開発することを目的とした。

### 3. 研究の方法

環状検出器を有する SEM を用いた磁気イメージング法を確立するために、申請者らがこれまで研究対象として取り扱ってきた L1<sub>0</sub> 型磁気記録合金 (CoPt, FePt, FePd) を用いて、基礎研究の位置づけにある (1) 磁気構造の可視化と結像機構の解明と応用・展開研究の位置づけにある (2) SEM 用磁場印加装置の試作、(3) 磁気構造の動的観察、(4) その他の磁性材料、デバイスへの展開を図った。

### 4. 研究成果

#### (1) 磁気構造の可視化と結像機構の解明 従来法との比較

L1<sub>0</sub> 型 FePt 規則合金単結晶の表面より取得した磁気力顕微鏡 (MFM) 像 (図 1 (a)) と In-lens 型の環状検出器を用いた SEM 像 (図 1 (b)) を比較した結果、磁化容易軸に垂直な面で見られる迷路状磁区構造のコントラストが双方で確認された。また、マクロな迷路状の内部には表面での磁区の分岐により生じた点状の微細な逆磁区が観察された。これらの形態は2つの結像法において1対1に対応しており、得られた SEM 像が磁区構造を反映したものであることが明らかとなった。また、逆磁区の大きさからサブ μm 程度の微細な磁

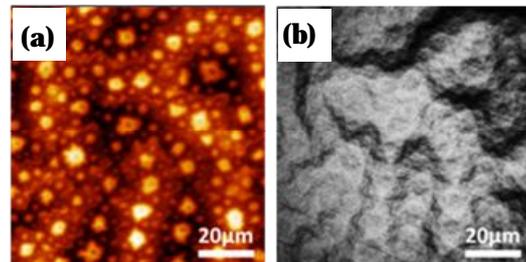


図 1 L1<sub>0</sub> 型 FePt 規則合金単結晶 (001) の (a) MFM 像と (b) 環状検出器によって取得した SEM 像。

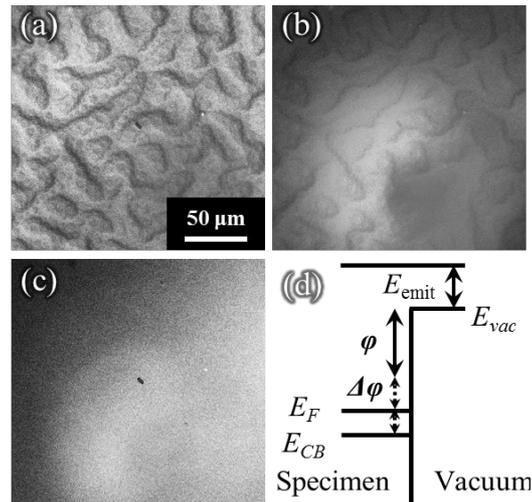


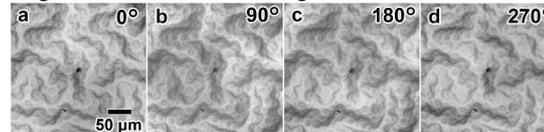
図 2 ステージバイアスが (a) 0 V、(b) 30 V、(c) 50 V の時の FePt 規則合金単結晶 (001) の SEM 像と (d) 試料と真空間のエネルギー準位図。

区構造も可視化できることが知られた。

#### 結像に寄与する電子

図 2 にステージバイアスを 0 から 50 V まで変化させた時の Fe-Pt 合金の磁区構造の変化と試料と真空間のエネルギー準位の模式図を示す。0 V の時は磁壁が暗線で表されている (図 2 (a))。30 V でコントラストが急激に低下し、更に 50 V まで上昇させるとコントラストが完全に消失した (図 2 (b), (c))。ステージバイアスが印加されていない場合、

Magnetic contrast observed using ILD



Magnetic contrast observed using ETD

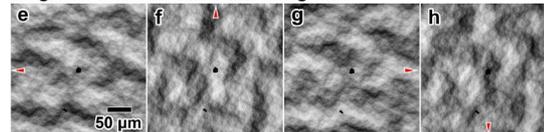


図 3 磁区構造のコントラストに及ぼす試料回転の影響。(a-d) 試料回転によってもコントラストが変化しない環状検出器で取得した像。(e-h) コントラストが変化する従来型検出器で取得した像。

電子が試料外へ脱出するのに必要なエネルギーは真空準位  $E_{vac}$  とフェルミエネルギー  $E_F$  の差となる。ここで試料に正のステージバイアスを印加すると、そのエネルギーは  $+eV$  に増加するため、放出後のエネルギー  $E_{emit}$  が  $eV$  [eV] 以下 ( $e$  は電気素量) の電子は試料外に脱出できなくなる (図 2 (d))。従って、結像に寄与しているのは 50 eV 以下のエネルギーを持つ電子、すなわち、2次電子であることが知られた。そこで試料直上に特定方向に働く漏洩磁界を設定し2次電子軌道のシミュレーションを行った。漏洩磁界の有無により磁界を設定した方向と垂直方向に2次電子の分布がシフトし、光軸に対する中心対称性が失われることが判明した。この結果は面内成分の漏洩磁界が存在する領域(磁壁上)と存在しない領域の間で2次電子の検出数が異なることを示しており、このことが磁壁に対応する磁気コントラストの成因であると考えられた。

### 環状検出器の優位性

環状検出器で得られる磁区構造のコントラストは、試料を光軸回りに回転させても変化が見られなかった(図 3 (a-d))。これは、光軸に非対称に配置されている従来の2次電子検出器(図 3 (e-h))とは異なり、環状検出器が鏡筒内に光軸に対して中心対称に配置されているため、試料回転に対して二次電子の収量が不変である事に起因すると考えられる。このような特徴は、従来のSEMでは報告されておらず、本法の優位性が示された。

### (2) SEM用磁場印加装置の試作

図 4 に示す SEM 用磁場印加装置を試作し、試料中央部に約 12 mT の磁場を印加できることを確認した。しかしながら電磁コイルの通電電圧を増加させると、視野のシフトが起こった(図 6)。これは印加磁場が磁性体内部を通過しているだけでなく、試料直上に漏れ出たため、入射二次電子が偏向され視野全体がシフトしたと推察された。今後さらに継続的に改良を行う予定である。

### (3) 磁気構造の動的観察

図 4 の印加装置を用いて FePd の磁壁移動の観察を行った。装置の性能と問題点は上述した通りであるが、磁壁の移動に起因すると考えられるコントラスト変化が認められた。加熱ステージを用いた FePt (キュリー点: 385 °C) の熱消磁過程の観察では、加熱に伴い 300 ~ 350 °C で磁区構造のコントラストが低下し、キュリー点以上の 400 °C では完全に消滅した(図 7)。

### (4) その他の磁性材料、デバイスへの展開

その他の磁性材料として超磁歪材料である Terfenol-D の観察を行った。観察以前の問題として試料の表面研磨が非常に困難であったが、磁区構造の観察には成功した。一方、本研究の着想のきっかけとなった

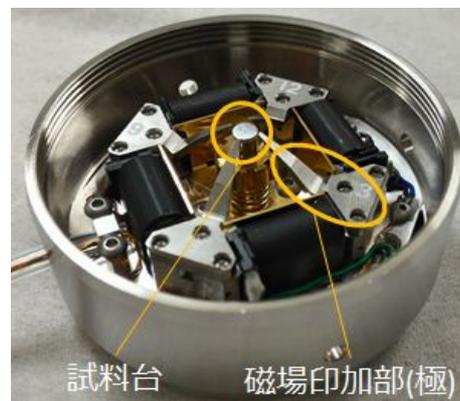


図 4 試作した SEM 用磁場印加装置。

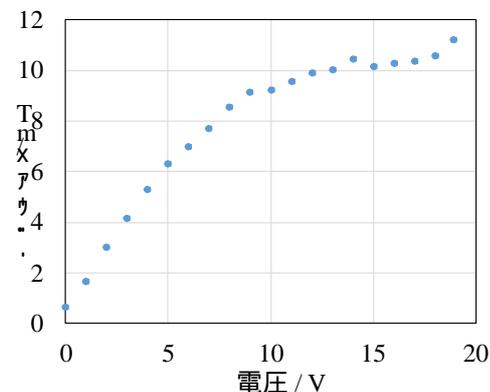


図 5 試作装置の電磁コイルへの通電電圧に対する試料台中心における磁束密度変化。

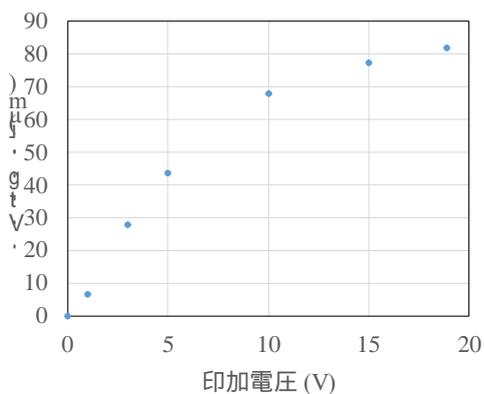


図 6 電磁コイルへの通電電圧と観察領域のシフト距離。

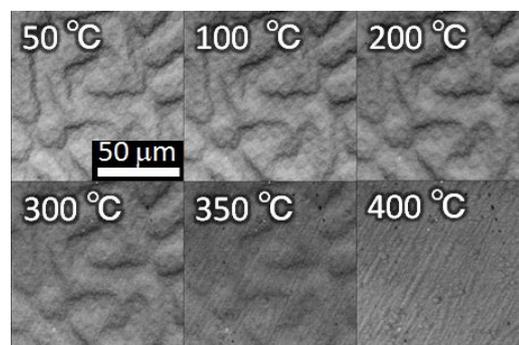
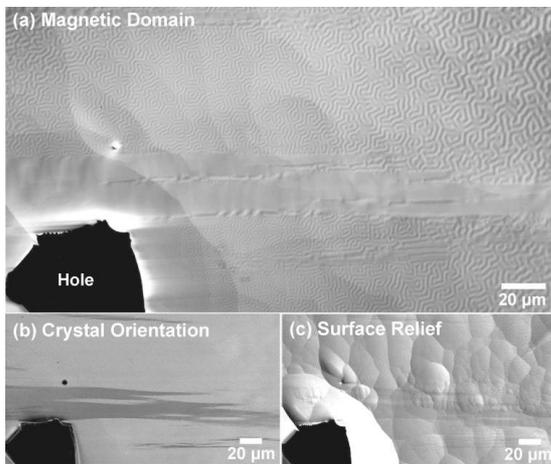


図 7 FePt (キュリー点: 385 °C) の熱消磁過程の観察。



**図 8** 異なる検出器を用いて結像した CoPt の (a)磁区構造, (b)結晶方位差, (c)表面起伏を反映した SEM 像。

Ni<sub>2</sub>MnGa 強磁性形状記憶合金において観察された湾曲した複雑なコントラストは、磁区構造を反映したものではなく、特定の SEM 観察条件下で現れるマルテンサイトの表面起伏に由来した現象であることが判明した。同様のコントラストは磁性を持たない Ti-Ni, CuAlNi 合金のマルテンサイト相においても観察された。この結果は本研究の本来の目的から逸脱したものではあるが、マルテンサイト変態に代表される結晶性材料の変位型相変態に伴う組織変化を SEM 観察する際に注意すべき点であることが判明した。

### (5) まとめ

本研究では、従来の SEM で利用していたものとは形状が異なる環状検出器を用いて、ローレンツ力で偏向された電子を効率よく収集することで、試料表面に現れる磁区構造の全貌を、ごく簡単な操作・観察で明らかにできることを示した。本手法では図 8 に示すように磁区構造全体を一度に可視化でき、さらに表面形状などの情報ともよく切り分けられた高分解能の像が得られることから、磁性体表面の磁区構造を様々な組織因子（形態、結晶方位、化学組成など）と関連付けて迅速に評価できる手法として、磁石材料や磁気記録媒体等に関わる学術・工業分野への展開が期待できる。

## 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 1 件)

Hiroshi Akamine, So Okumura, Sahar Farjani, Yasukazu Murakami, Minoru Nishida, Imaging of surface spin textures on bulk crystals by scanning electron microscopy, Scientific Reports, 査読有, Vol. 6, 2016, 37265(8 pages). DOI: 10.1038/srep37265

### 【学会発表】(計 7 件)

赤嶺 大志, 奥村聡, Sahar Farjani, 村上恭和, 西田稔, 走査電子顕微鏡と環状検出器を用いた表面磁区構造観察法の検討, 日本金属学会 2017 年春期講演大会(第 160 回), 首都大学東京・南大沢キャンパス, 2017 年 3 月 15 日。

So Okumura, Hiroshi Akamine, Sahar Farjani, Yasukazu Murakami, Minoru Nishida, New Magnetic Imaging Technique Using SEM with In-Column Annular Detector, The 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9), Kyoto Int. Conf. Center, Aug. 2. 2016, Received Excellent Poster Award for Young Scientist.

奥村聡, 赤嶺大志, Farjani Sahar, 西田稔, 村上恭和, インレンズ型環状検出器を用いた SEM 磁気イメージング, (公社)日本顕微鏡学会 第 72 回学術講演会, 仙台国際センター・宮城, 2016 年 6 月 14 日。

奥村聡, 赤嶺大志, Farjani Sahar, 村上恭和, 西田稔, 走査電子顕微鏡による新規磁気イメージング法の開発, (公社)日本金属学会 2016 年春期講演大会(第 158 回), 東京理科大学葛飾キャンパス 2016 年 3 月 23 日, 優秀ポスター賞受賞。

### 【その他】

新聞掲載「日刊工業新聞：走査型電子顕微鏡で磁区観察, 2017 年 2 月 9 日」

九州大学プレスリリース, 電子顕微鏡による磁性体観察の新展開 - 磁石材料や磁気記録媒体への応用に期待 -  
(西田稔 総合理工学研究院 教授)  
(村上恭和 工学研究院 教授)  
[http://www.kyushu-u.ac.jp/f/29490/16\\_12\\_15.pdf](http://www.kyushu-u.ac.jp/f/29490/16_12_15.pdf), 2016 年 12 月 15 日

第 66 回 日本金属学会金属組織写真賞優秀賞, [第 2 部門] 走査電子顕微鏡部門「SEM による磁気イメージング～環状検出器による L10 型 CoPt 合金の磁区構造観察」, 赤嶺大志, 奥村聡, Sahar Farjani, 村上恭和, 西田稔, 2016 年 3 月 23 日。

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

西田 稔 (NISHIDA, Minoru)  
九州大学・大学院総合理工学研究院・教授  
研究者番号：90183540

### (2) 研究分担者

板倉 賢 (ITAKURA, Masaru)  
九州大学・大学院総合理工学研究院・准教授  
研究者番号：20203078

光原 昌寿 (MITSUHARA, Masatoshi)  
九州大学・大学院総合理工学研究院・准教授  
研究者番号：10514218

ファルジャミ サハ (Farjami, Sahar)  
九州大学・大学院総合理工学研究院・助教  
研究者番号：20588173

**(3) 連携研究者**

村上 恭和 (MURAKAMI, Yasukazu)  
九州大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号：30281992

**(4) 研究協力者**

宮崎 伸介 (MIYAZAKI, Shinsuke)

赤嶺 大志 (AKAMINE, Hiroshi)

副島 洋平 (SOEJIMA, Yohei)