

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2021

課題番号：18K14117

研究課題名（和文）電子線偏向の定点観測によるマイクロ秒磁気ダイナミクスの観測

研究課題名（英文）Observation of micro-second magnetic dynamics by electron deflections

研究代表者

柴田 基洋（Shibata, Kiyou）

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号：40780151

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,700,000円

研究成果の概要（和文）：磁気構造のダイナミクスの分析方法として、走査透過型電子顕微鏡において電子プローブのスキャンをほぼ停止した状態で多分割環状検出器により電子線偏向の経時変化を観察する手法を提案し、実験と理論計算の両面から検証した。マグネタイトナノ粒子について実験を行い、静電ポテンシャルが与える位相変化のシミュレーションと比較することで観測精度の見積もりを行ったほか、関連する磁気ダイナミクスの実験的観察、磁気ダイナミクスのマイクロマグネティックシミュレーションによる安定磁気構造探索等を行った。これにより、ナノスケール領域における磁気ダイナミクス観察の手法開発や新たな磁気材料探索に有用な知見が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実験的な電子線偏向の観察とシミュレーションとの比較による精度の見積もりなどにより、ナノスケール局所領域における磁気ダイナミクス観察手法開発に有用な知見が得られた。また、関連する磁気ダイナミクスの観察やマイクロマグネティックシミュレーションによる磁気構造の安定性の探索を通して、新たな磁気ダイナミクスや磁気構造の検討も行った。将来的にこれらの知見をもとに局所領域の電子線偏向時間分解観測手法として確立できれば、局所的な高速磁気ダイナミクスの実空間観察に基づく基礎学理の構築や磁気デバイスの応用研究への貢献が期待できる。

研究成果の概要（英文）：As a method of analyzing the dynamics of magnetic structures, I proposed a method of observing changes in electron beam deflection over time in a scanning transmission electron microscope using a segmented annular all-field detector while the electron probe scanning is nearly stopped, and verified it both experimentally and by theoretical calculations. Experiments were performed on magnetite nanoparticles to estimate the accuracy of the observation by comparing the phase change induced by electrostatic potential with simulations. I also experimentally observed the related magnetic dynamics and searched for stable magnetic structures by micromagnetic simulation. As a result, useful knowledge was obtained for the development of methods for observing magnetic dynamics in the nanoscale region and for the search for new magnetic materials.

研究分野：透過型電子顕微鏡

キーワード：透過型電子顕微鏡 磁気ダイナミクス マイクロマグネティックシミュレーション 磁性体 電子線偏向

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

情報通信量やそれに伴う電力消費が増加の一途を辿っている現代情報社会において、不揮発性、高密度集積性、高速制御性を有する磁気デバイスの重要性は増している。強磁性体磁気デバイスは高密度化のために記録ビットの微細化が進み、超常磁性限界などナノスケール特有の問題が顕在化しつつある。更なる磁気デバイスの技術発展には、微細構造中の磁化や磁気スキルミオンといったナノスケール磁気構造の高速なダイナミクスのナノスケール局所分析と基礎学理の深化がより一層重要となると考えられる。

ナノスケールの局所磁化分析に関しては、電子線をプローブとし高い空間分解能で実空間観察が行える透過型電子顕微鏡(TEM)の活用が有効である。ローレンツ透過型電子顕微鏡法(LTEM)、電子線ホログラフィーなどの TEM を用いた磁気構造観測手法は、電磁レンズによる光学系で実現される高い空間分解能に加え、透過電子線の偏向から直接面内磁化分布が得られる、表面敏感でなく試料内部も含めた磁化が観測できる、などの点において有用な手法である。しかし、透過電子線の強度分布を画像として得る場合、検出器感度の都合で露光時間を 1s 程度まで長く取る必要があり、 $1\mu\text{s}$ 程度の高い時間分解能を得ることは容易ではない。

このような背景の中で近年、収束電子線を試料上で走査しながら透過した電子線の偏向を多分割環状(SAAF)検出器の 4 つの検出領域に入る電子線の強度分布として観測する微分位相コントラスト(DPC)-走査透過型電子顕微鏡法(STEM)の磁性体への利用が進んでいる[1](図1)。電子線の偏向は試料中の磁化ベクトルの面内成分に起因する電子線の位相変化の勾配に比例するので、電子線が透過した局所領域の面内磁化分布が直接得られる。実際に DPC-STEM 法により 100nm 程度の大きさの磁気スキルミオン構造が観測されている[2]。DPC-STEM 法の時間分解能は観察領域の走査時間で決まり、典型的には 1s 程度である。申請者はこの DPC-STEM 法を定点観測で行い空間分解能を犠牲にすれば、高い時間分解能を得ることが可能ではないかと考えた。通常の STEM における各点毎のビーム照射時間は $1\mu\text{s}$ 程度であることから、SAAF 検出器の信号取得レートは 1MHz 程度である。そのため、電子線を走査せずに定点に当て続けることで、照射位置における磁化が $1\mu\text{s}$ 毎に直接観測可能であると期待される。電子線偏向の定点観測(以下“定点 DPC”)は通常の DPC-STEM 法と比較して圧倒的に高い時間分解能が期待できるほか、信号取込の積算時間を $1\mu\text{s}\sim 1\text{s}$ で変化させることで非常に幅広い帯域の磁化ダイナミクスの観測に対応できる。加えて、繰り返し現象を発生させて積算するポンププローブ方式と異なり、原理的に時間発展を逐次直接観測し積算を必要としないため、現象の反復性がなくても適用できる。

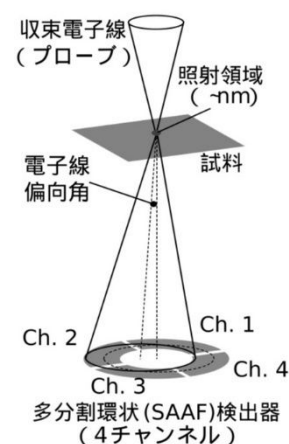


図 1 DPC-STEM 法

2. 研究の目的

本研究では DPC-STEM 法を局所的な磁気ダイナミクスの分析に展開するために以下の研究目的を設定した。

- (1) 定点 DPC データの取得法の確立
- (2) 観測範囲・観測感度の評価と最適化
- (3) 磁気ダイナミクスへの適用や観測対象の実験と計算両面からの検討

3. 研究の方法

研究の目的で示した各目的に対してそれぞれ以下のとおり研究を実施した。

- (1) 実験的に実現するにはビーム走査範囲制御および安定性の確認が必要となる。具体的には走査透過型電子顕微鏡(STEM)において無磁場下で電子線プローブの走査をほぼ停止した状態を実現する。さらに、多分割環状検出器を用いて電子線の強度の時間変化を検出できるか検討する。
- (2) 磁性ナノ粒子などを用いて実験的に定点 DPC シグナルを取得するとともに、マイクロマグネティックシミュレーションで得られる位相分布から DPC シグナルを計算し比較することで得られた微分位相感度の評価を行う。

実験的評価

磁性ナノ粒子を用いてビーム走査範囲制御および安定性の確認を行う。具体的には室温無磁場下で直径 30nm のマグネタイトナノ粒子について、ビーム走査パラメータを連続的に変えて DPC-STEM 観察を行う。

シミュレーションによる評価

微分位相感度の評価をマイクロマグネティックシミュレーションによって計算した磁化分布のダイナミクスと電子位相変化のモデリングにより得られる感度を評価する。直径 30nm のマグネタイトナノ粒子について観察された DPC シグナルと静電ポテンシャルで予想される位相変化とを比較する。

- (3) DPC-STEM 手法での局所的な磁気ダイナミクス観察に適した時間スケールの磁気構造やダイナミクスを実験と計算の両面から探索する。

実験的探索

磁気スキルミオンと呼ばれるナノスケール渦状磁気秩序は、高密度での集積や低電流密度での駆動などの優れた特性を有し、高密度・省電力な磁気デバイスの情報担体として期待されているため、その磁気ダイナミクスの実験的観察を試みる。

計算科学的探索

シミュレーションによる新たな磁気ダイナミクスの探索に向けては、特に D2d の対称性を有するバルク DM 相互作用が安定化するアンチスキルミオンなどの系の重要性が増しているため、D2d の対称性を有するバルク DM 相互作用を取り込んだマイクロマグネティックシミュレーションコードを作成し、新規磁気材料における磁気相の安定性やダイナミクスをシミュレーションで探索する。

4. 研究成果

研究の目的で示した各目的に対して研究で得られた成果を記す。

(1) 定点 DPC データの取得法の確立

TEM の開発企業や研究者との議論などを行った結果、利用している電子顕微鏡については、電子線のスキャン範囲を調節するパラメータを利用して電子線プローブの走査範囲を実行的に狭める方法が有効であることが分かった。また、パラメータを調節することでプローブサイズに対して十分にスキャン範囲を狭くし、実質的に電子線を停止した状態で SAAF 検出器によりシグナルを取得することができることも分かった。実際に、以下(2)でナノ粒子を対象として STEM 観察でビーム走査に関するパラメータを調節することでスキャン範囲が狭くできることが確認できた。

(2) 観測範囲・観測感度の評価と最適化

実際に、直径 30nm のマグネタイトナノ粒子を対象として STEM 観察を行うことでスキャン範囲が狭くなることを確認し、DPC シグナルの取得を行い、観測範囲と微分位相感度の評価を試みた。STEM のビーム走査に関するパラメータを制御することにより、無磁場下 (Low-Mag mode) においてビームのスキャン範囲を連続的に狭くすることができた。得られた DPC シグナルの STEM-DPC シグナル (面内電場強度 E のマッピング) を図 2 に示す。ビーム走査パラメータに比例して走査範囲が減少していくことが確認できた。プローブサイズ (~1nm) に対して原理的に 13 pm × 13 pm までの縮小が行え、プローブサイズに対して十分に狭くほぼ定点観察が実現できることを確認した。

更に、図 3 にスキャン範囲を狭めた状態で得た面内 E マップを示す。走査方向に垂直な方向に周期的なノイズが観測されていたが図 3(左)、スキャンの折り返しの際にビームの位置を安定させるための待機時間である flyback time を 50Hz の逆数の 20ms 程度に合わせて調整することでノイズが低減できることが分かった図 3(右)。

一方で、走査範囲を小さくすることはできても、装置設計上は矩形領域をラインスキャンの繰り返しで取得するようになっているため、高速で走査を行う場合には各ラインスキャンの後 flyback time の分だけ待機時間が生じてしまう。このことから、連続的な磁気ダイナミクスとして 1 μ s の時間分解能で取得可能な時間スケールは 1 ライン毎に限定され、1 μ s で 1000 点程度とし

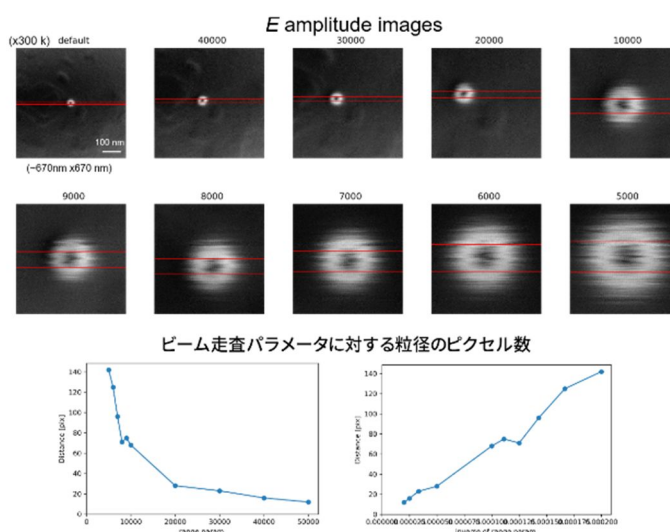


図 2 上図: 直径 30nm のマグネタイトナノ粒子について得られたビーム走査パラメータについての STEM-DPC シグナル (面内電場強度 E のマッピング)。下図: ビーム走査パラメータに対する粒径のピクセル数 = スキャン点数。

Magnetite nanoparticle (d = 30nm), E colored images

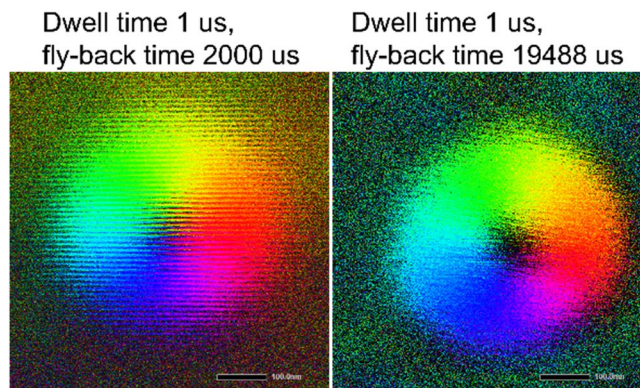


図 3 直径 30nm のマグネタイトナノ粒子についての DPC シグナルの flyback time の調節によるノイズ低減

て、1ms 程度のオーダーとなることが分かった。

直径 30nm のマグネタイトナノ粒子について実験的に得られた DPC シグナルと、球体を仮定して予想される静電ポテンシャルから計算した DPC シグナルを比較することでおよその微分位相感度を見積もった。観察された DPC シグナルと静電ポテンシャルから計算した位相変化分布とを比較した結果について図 4 に示す。これらからビーム滞在時間 $1\mu\text{s}$ で $0.4\text{rad}/\text{nm}$ 程度のシグナルが検出可能であることが分かり、マイクロ秒スケールの磁化ダイナミクスが観察可能な感度であることがわかった。

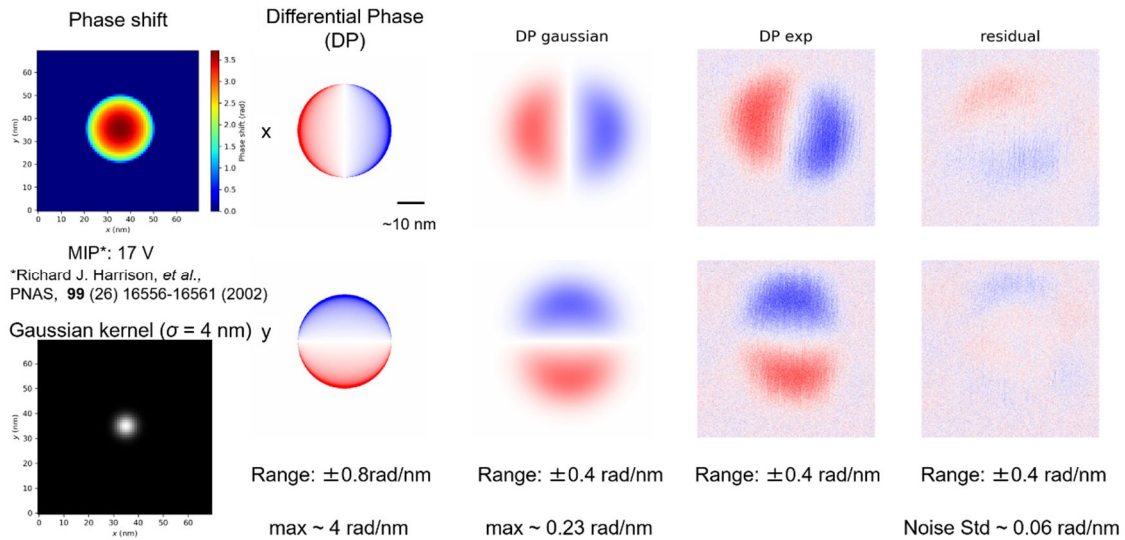


図 4 マグネタイトナノ粒子についての DPC シグナルのシミュレーションとの実験の比較による微分位相感度評価。

一方で、本定点観測の課題として、試料のドリフトの状況が原理的に確認できないため、DPC シグナルの経時変化が磁化のダイナミクスによるものであるか評価が難しい。目的の電子線偏向の時間変化を、試料のドリフト、ビーム電流量の変動、SAAF 検出器のノイズなどから切り分けることが必要となることが確認できた。この点では、完全な定点観察を目指すよりも、目的とする十分に小さい局所領域をスキャン範囲として取得することで、ドリフト補正を後処理で行うなどの手法が有効であると考えられる。

なお、転移温度が室温以上の Y タイプヘキサフェライトの薄片でも磁気ダイナミクス観察を試みたが、有意な磁気シグナルを検出することができなかった。また、磁気スキルミオンや Ni の磁壁に対する電流印加その場 LTEM 観察を行う計画を進めていたが、本研究期間では実際に DPC シグナルから磁気ダイナミクス由来の位相変化を静電ポテンシャルの位相変化と分離して観察までには至らなかった。今後、得られた知見を活かし、より適した観察対象の探索などと合わせて、本手法の検証と応用を試みていきたい。

(3) 磁気ダイナミクスへの適用や観測対象の実験と計算両面からの検討

本観測手法の時間スケールに対応したダイナミクスの実験的探索とマイクロマグネティックシミュレーションによる探索を行った。

実験的探索など

FeGe における磁気スキルミオンの熱生成・消滅過程のタイムラプス観察

$10\mu\text{m}$ 四方程度の FeGe を収束イオンビーム加工で作成し、温度・磁場を一定に保った状態で長時間 LTEM により観察することで磁気スキルミオンの生成・消滅の統計的な分析を試みた。250K について得たスキルミオン数の増減についての分析結果を図 5 に示す。生成・消失いずれについてもスキルミオン数の時間変化は概ね単純な対数関数によりフィットできた (図 5 左列)。強磁性状態との境界の長さ (図 5 右) とは強い相関が観られなかったため、生成・消滅は場所によらずランダムであるとして、生成・消滅にかかる典型的な時間の磁場依存性を得ることができた (図 5 中列)。

磁場を適切に設定すれば、1min 以下の比較的短い時間スケールのダイナミクスが生じるため、定点 DPC による観測対象となりうると考えられる。特に (2) で扱ったような走査領域の拡大で一つの磁気スキルミオンが生成あるいは消滅する領域でビームを走査し、経時変化を解析することで、磁気スキルミオンの消滅の磁気ダイナミクスの消滅の過程などの情報が得られる可能性がある。

計算科学的探索など

X 線トモグラフィーを用いて $\text{Mn}_{1.4}\text{Pt}_{0.9}\text{Pd}_{0.1}\text{Sn}$ において観測された数百ナノメートルの直径のスキルミオンひもの 3 次元形状について、本研究で開発を進めていた D2d の対称性を有するバルク DM 相互作用を取り込んだマイクロマグネティックシミュレーションコードを活用し実験的観測結果と整合する磁気構造を提示する形で共同研究を行うことができた [3]。

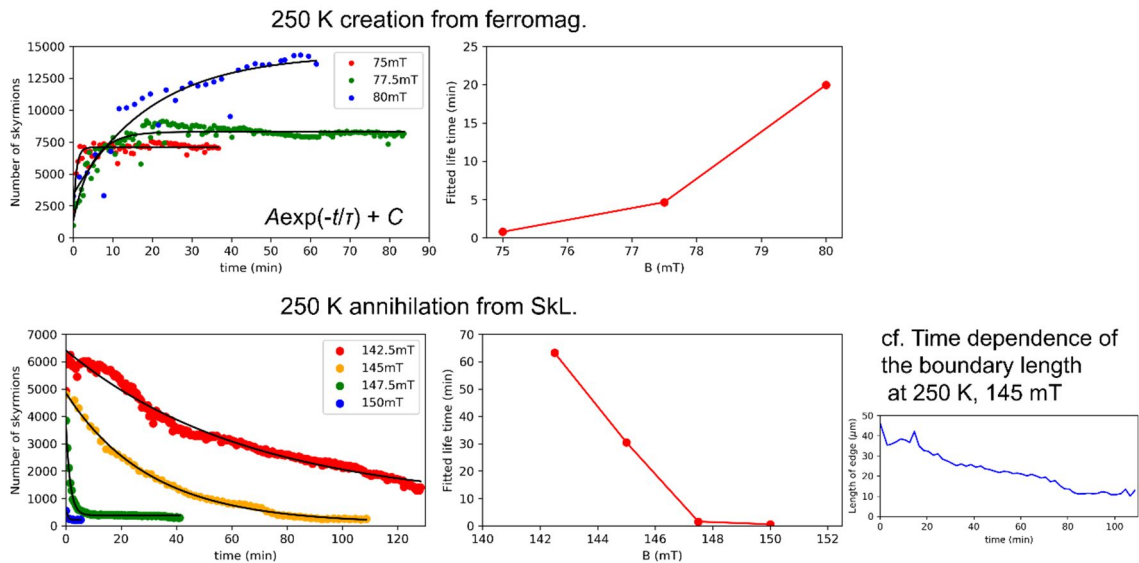


図 5FeGe 薄片における磁気スキルミオン数の生成 (上段)・消滅 (下段) の経時変化解析; 左列) 各磁場における磁気スキルミオン数の時間変化; 中列) 対数関数によるフィッティングで得られた典型的な時間の磁場依存性; 右) 磁気スキルミオンのクラスターの強磁性状態となす境界の長さ

<引用文献>

1. 柴田直哉, 顕微鏡 54 巻 2 号 p. 77-84 (2019).
2. T. Matsumoto *et al.*, Sci. Adv. 2, e1501280 (2016).
3. S. Seki *et al.*, Nature Materials 21, 181-187 (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Seki S., Suzuki M., Ishibashi M., Takagi R., Khanh N. D., Shiota Y., Shibata K., Koshibae W., Tokura Y., Ono T.	4. 巻 21
2. 論文標題 Direct visualization of the three-dimensional shape of skyrmion strings in a noncentrosymmetric magnet	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 181 ~ 187
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41563-021-01141-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 K. Shibata, X. Z. Yu, Y. Tokura, T. Arima
2. 発表標題 Structure and Behavior of Magnetic Skyrmions ~Magnetic Imaging by Electron Holography and Lorentz TEM ~
3. 学会等名 International Workshop of Ultra-High-Resolution on Microscopy 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 柴田基洋、于秀珍、有馬孝尚
2. 発表標題 定点微分位相コントラスト法によるマイクロ秒ダイナミクス観測の試み
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第75回学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------