

平成 21 年 5 月 22 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19760484

研究課題名 (和文) 透過型電子顕微鏡による軟磁性材料の高周波磁気特性解析法の確立

研究課題名 (英文) Development of a novel transmission electron microscopy for analysis of high frequency magnetic properties of soft magnetic materials

研究代表者

赤瀬 善太郎 (AKASE ZENTARO)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：90372317

研究成果の概要：軟磁性材料の多くは交流磁場下で利用されるが，材料組織が磁気特性と具体的にどう関わっているのかということについては，特に電子顕微鏡スケールにおける動的磁場下での観察技術が後れているために不明な点が多い．そこで本研究では透過型電子顕微鏡内の試料に交流磁場を印加しつつ，そのときの磁区構造変化をリアルタイムで観察する新しい手法を確立し，実用材料に適用した．本手法により，磁壁が介在物，格子欠陥，歪み場等と相互作用しつつ運動している様子が観察できるようになった．

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,400,000	0	2,400,000
2008 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	240,000	3,440,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学，構造・機能材料

キーワード：透過型電子顕微鏡，磁性材料，高周波，ローレンツ顕微鏡法，その場観察

1. 研究開始当初の背景

軟磁性材料の多くは交流磁場下で利用されるが，材料組織が磁気特性と具体的にどう関わっているのかということについては，特に電子顕微鏡スケールにおける動的磁場下での観察技術が後れているために不明な点が多く，基礎的な研究が必要とされている．

こうした状況において，代表者らは独自に開発した透過型電子顕微鏡 (TEM) 用磁場印加試料ホルダを用いて，軟磁性材料の一つで

ある電磁鋼板の磁区構造をローレンツ顕微鏡法や電子線ホログラフィーという手法で評価してきた．しかし，当初の磁場印加システムでは交流磁場を印加することができなかったため，トランスやモーターとして実際に使われている交流磁場下での特性の解明には限界があった．

そこで，実際の使い方即ち条件下での磁壁の振る舞いを解明するために，TEM 内で試料に交流磁場を印加する独自のシス

テムを考案し、本研究課題を通して手法の確立と応用を目指した。

TEM 内で高周波磁場を発生させて試料の磁壁の振る舞いを解析する研究は、世界的にほとんど行われていなかった。なぜなら、TEM 内で磁場を印加するとローレンツ力により電子線が偏向してしまい、特に交流磁場下では像が交流の周期でぶれてしまうという実験上の難しさがあったからである。海外では幾つか研究が発表されていたが、いずれも電子線の振り戻しの機構が不完全であるため、極めて微弱な磁場しか印加できず、観察対象が限定されていた。

それに対し、代表者らが進めている観察手法では比較的強い磁場が印加でき、また、様々な透磁率の材料に適用できる可能性があった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、高周波磁場下での磁壁の挙動を TEM でその場観察し、材料の動的磁場下での磁気特性を解明することである。具体的に取り組む課題は質的に2種類有り、同時に進められた。一つは(1)本実験手法の確立であり、もう一つは(2)実用材料への適用である。(1)手法の確立に関しては、課題申請当初の磁場印加装置は試作器段階だったため、交流磁場を印加する機能が満たされていなかった。よって先ず①装置を改良する必要があった。次に②観察時のパラメータ（印加磁場強度、ローレンツ顕微鏡法観察時のディフォーカス量）を任意に選択して観察するための操作手順を確立することを目指した。次に(2)実用材料への適用に関しては、交流磁場下での磁気特性を材料の微細組織と関連させて微視的な見地から解明することを目的とした。特に格子欠陥を含む微細組織との関連を調べることは TEM 以外には方法がないので、先駆的な研究となることが期待された。

3. 研究の方法

代表者らが考案した磁場印加システムの概略図（TEM 境筒内の試料周辺部）を図1に示す。試料ホルダ先端に電磁石と磁極が取り付けられていて、その磁極の上に試料が乗っており、試料に水平な磁場を印加できるようになっている。交流磁場は、波形発信器からの信号をアンプで増幅し電磁石のコイルに流すことで実現される。磁場印加によるビームの偏向は試料上部の二組の偏向磁極によって補正される仕組みになっており、偏向磁極のコイルの交流電流は磁場印加ホルダの電流と同期をとっている。各磁極のコイルの電流量は独立した3つのアンプによって調節される。課題申請時にはこの装置は二段目の偏向磁極の部分が未完成だったので、研究協力者の井上雅夫氏（(株)日本電子）と緊

密に連絡を取りながら装置の改良を行った。

本手法を適用する実用材料として、主に電磁鋼板を取り上げた。鋼板中の析出物が磁壁移動に及ぼす影響を明らかにするため、析出物の種類やサイズなどに注意を払って磁壁ピン止め力の違いを観察した。研究を進めるにあたり、研究協力者の谷山明氏（(株)住友金属工業）から観察用資料を提供していただき、また析出物の分析についても共同で実験を進めた。

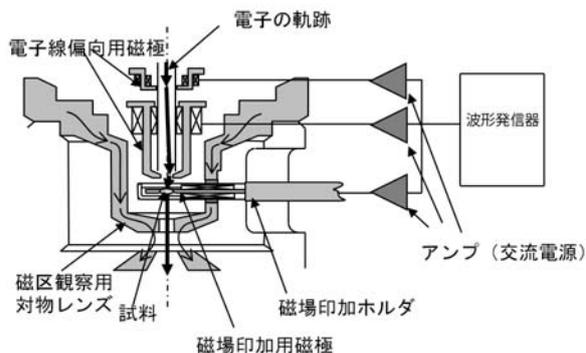


図1 交流磁場印加システムの概略図

4. 研究成果

(1)「TEM 内交流磁場印加システム」の機能の補完と観察手法の確立

研究協力者の井上雅夫氏との共同で、これまでにかけていた機能（ディフォーカス量の任意選択の機能）の補完を行い、実際の試料観察を通して観察手順を確立した。

図2に本手法による典型的な観察例として、二方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像のスナップショットを示す。図中黒矢印で示した方向に磁場が印加されていく様子を捉えたもので、印加磁場は 0.34 Hz 、 $\pm 2.5 \text{ kA/m}$ ($\pm 3.1 \text{ mT}$) である。磁壁を破線で、磁化の方向を矢印で示している。（ビデオ画像中央の黒い丸点は TEM の小蛍光板のセンタースポットなので、無視されたい。）試料面内に磁化容易軸の $\langle 100 \rangle$ と $\langle 010 \rangle$ が存在し、 180° 磁壁は磁化容易軸に沿っている。磁場印加に伴い、磁壁は滑らかに移動し、印加磁場と反対方向を向いた磁区の領域は次第に小さくなっていき、(d)では磁場印加方向を向いた磁区と、印加磁場に対して 90° 方向を向いた磁区だけが残っている。また、図中矢先で示した部分には SiO_2 介在物が存在しており、取り残された磁区は介在物周りの静磁エネルギーを下げる役割をしていると考えられる。

図3に任意のディフォーカス量で観察ができるようになった例として、センダスト薄片に 1 Hz 、 $\pm 100 \text{ Oe}$ の磁場を印加した際のローレンツ顕微鏡像の変化を示す。(a),(b)はオーバーフォーカスで撮影した際の像で、

(c),(d)はアンダーフォーカスで撮影した際の像である。オーバーフォーカス像とアンダーフォーカス像では磁壁の明線、暗線のコントラストが逆転しているところに注意されたい。このように任意のディフォーカス量において明るい視野の動画を撮影することができた。ディフォーカス量を制御できるということは、磁化の大きさが異なる種々の材料に本手法を適用できることを意味する。

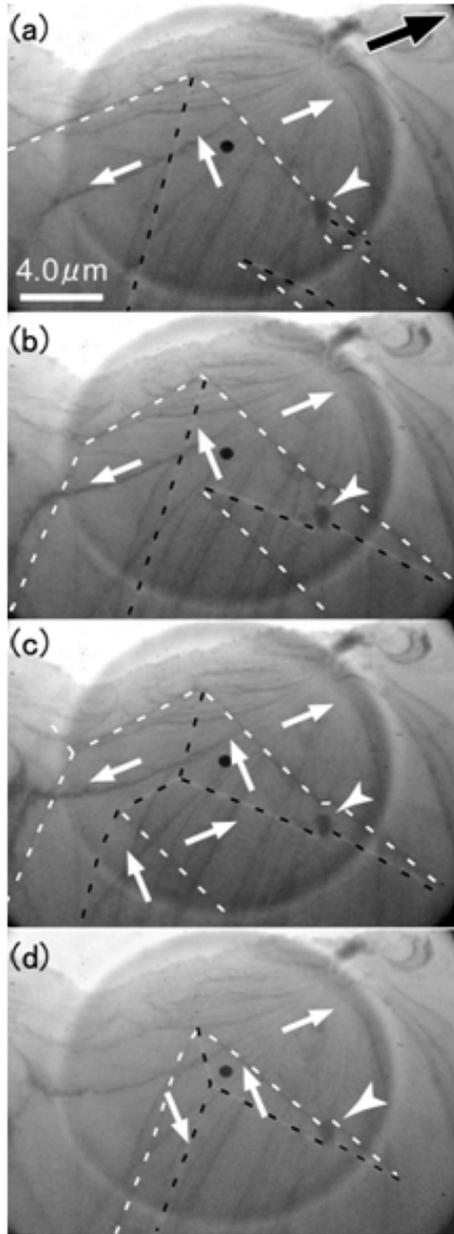


図2 動的磁場下(0.34 Hz, ± 2.5 kA/m (± 3.1 mT))で観察した二方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像のスナップショット。磁壁を破線で、 SiO_2 介在物を矢先で強調している。白矢印は磁化の方向を示す。黒矢印は増加する印加磁場の方向。(文献④)

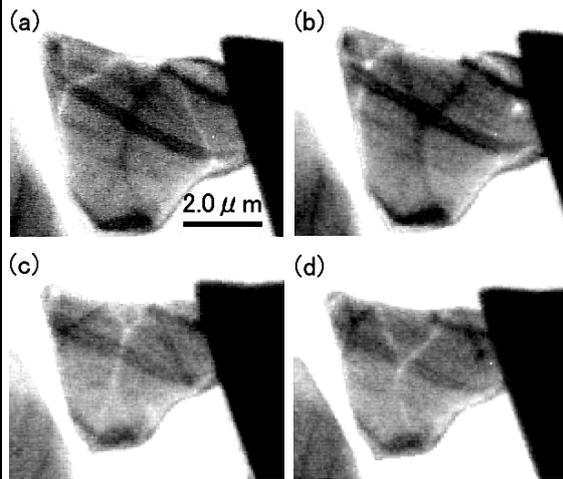


図3 センダスト薄片のローレンツ顕微鏡像。(a),(b) Over focus, 1 Hz. (c),(d) Under focus, 1 Hz.

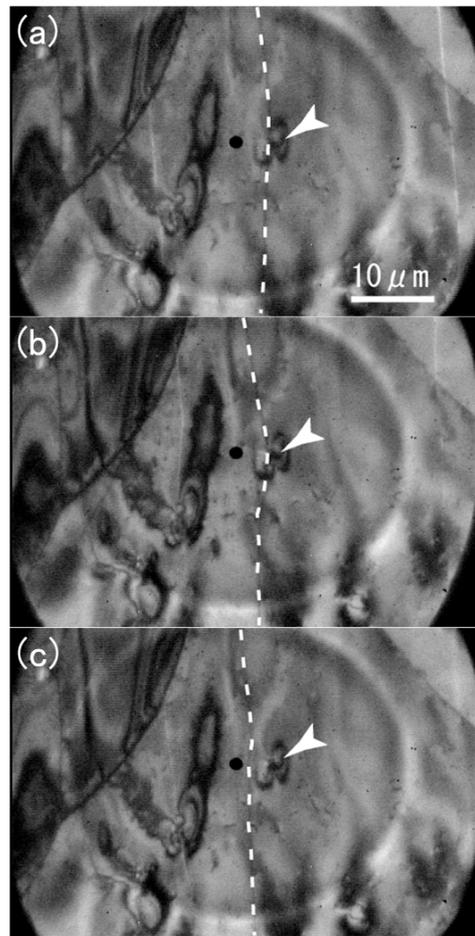


図4 動的磁場下(1.0 Hz, ± 2.4 kA/m (± 3.0 mT))で観察した無方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像。右図では磁壁を破線で、 AlN 介在物を矢先で強調している。(a) 磁壁が介在物にピン止めされているところ。(b) 磁壁が介在物から外れたところ。

(2)電磁鋼板における磁壁挙動の材料組織との関連の解析

本手法を既存の TEM の観察技法と組み合わせることで、介在物や格子欠陥などの微細組織と磁壁移動の関わりを明らかにすることができた。これは TEM を応用した本手法の最大のメリットである。

図 4 に電磁鋼板の観察例を示す。鋼中に AIN 介在物がみられ (元素分析は TEM の技法の一つであるエネルギー分散型 X 線分光法 EDS で行った)、回折条件を二波励起に近づけることで、介在物周りの歪み場や転位のコントラストも観察されている。この状態で磁壁を低周波のサイン波 (± 2.4 kA/m (± 3.0 mT) 程度) の外部磁場で緩やかに駆動したところ、磁壁が介在物にピン止めされる様子が動的に観察された。図は顕微鏡の小蛍光板に映った像をビデオカメラで撮影したスナップショットである。介在物を矢先で、磁壁を波線で強調している。このように、微細な介在物とその周辺に生ずる歪み場と磁壁の相互作用を動的に観察できるのは TEM を用いた本手法しかなく、本手法は軟磁性材料のヒステリシス損失の機構を解明する上で極めて有効であることが示された。

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 3 件)

- ①進藤大輔, 赤瀬善太郎: ローレンツ顕微鏡 (Lorentz Microscope), 査読有り, 顕微鏡, 44 (2009) pp35-40.
- ②進藤大輔, 村上恭和, 赤瀬善太郎: 透過電子顕微鏡による先端材料評価, 査読有り, 金属, 78 (2008) pp1062-1067.
- ③Zentarō Akase, Daisuke Shindo, Masao Inoue, Akira Taniyama: Lorentz microscopic observations of electrical steel sheets under an alternating current magnetic field, Materials Transactions, 48, (2007) pp2626-2630.

[学会発表] (計 9 件)

- ①赤瀬善太郎, 進藤大輔, 柿沼宏彰, 谷山明: TEMによる介在物を含んだ電磁鋼板の動的磁区観察, 日本金属学会第144回大会, 2009.3.30, 東京
- ②後藤隆之, 赤瀬善太郎, 進藤大輔, 平田京, 石田洋一: 電子線ホログラフィーを用いた磁気ヘッド周囲の磁場観察, 日本金属学会第144回大会, 2009.3.28, 東京
- ③D. Shindo, T. Yogo, Z. Akase: In Situ Observation of Magnetization Processes by Electron Holography and Lorentz Microscopy, The 9th Asia-Pacific

Microscopy Conference (APMC9), 2008. 11. 7, 韓国, 済州

- ④柿沼宏彰, 赤瀬善太郎, 進藤大輔, 谷山明: ローレンツ顕微鏡法による介在物と磁壁の相互作用の解析, 日本金属学会第143回大会, 2008. 9. 23, 熊本
- ⑤Z. Akase, H. Kakinuma, D. Shindo, M. Inoue, In situ Lorentz microscopy in an alternating current magnetic field, 14th European Microscopy Congress (EMC2008), 2008. 9. 2, Germany, Aachen
- ⑥赤瀬善太郎, 柿沼宏彰, 進藤大輔, 井上雅夫: 交流磁場下でのローレンツ顕微鏡法, 日本顕微鏡学会第64回学術講演会, 2008. 5. 21, 京都
- ⑦柿沼宏彰, 赤瀬善太郎, 進藤大輔, 井上雅夫, 谷山明: 動的磁区観察による鋼中析出物と磁壁の相互作用の解析, 日本金属学会第142回大会, 2008. 3. 26, 熊本
- ⑧進藤大輔, 村上恭和, 赤瀬善太郎: ホログラフィーと磁性体, 日本顕微鏡学会第51回シンポジウム, 2007. 10. 20, 徳島
- ⑨赤瀬善太郎, 進藤大輔, 井上雅夫, 飛世正博: 二段偏向を備えたTEM交流磁場印加その観察システムによるセンダストの動的磁区構造観察, 日本金属学会第141回大会, 2007. 9. 20, 岐阜

[その他]

金属組織写真優秀賞, A部門「交流磁場印加システムによる電磁鋼板の動的ローレンツ顕微鏡法観察」, 赤瀬善太郎, 柿沼宏彰, 進藤大輔, 井上雅夫, 谷山明, 日本金属学会 (2009. 3. 28)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤瀬 善太郎 (AKASE ZENTARO)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号: 90372317

(2) 研究協力者

進藤 大輔 (SHINDO DAISUKE)
東北大学・多元物質科学研究所・教授
研究者番号: 20154396

井上 雅夫 (INOUE MASAO)
日本電子株式会社・電子光学機器本部

谷山 明 (TANIYAMA AKIRA)
住友金属工業株式会社・総合技術研究所・主任研究員