

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04405

研究課題名(和文) 磁性体内部の磁区を観察する磁気顕微鏡の開発

研究課題名(英文) Development of an x-ray magnetic microscope aiming observation of magnetic domains inside materials

研究代表者

稲見 俊哉 (Inami, Toshiya)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 放射光科学研究センター・上席研究員

研究者番号：30354989

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：モーターやトランスを構成する電磁鋼板や永久磁石など、機能性磁性材料は我々の生活を支える重要素材である。こうした機能性磁性材料の性能向上には、磁区(磁気モーメントが一方向にそろった小さな領域)の形状や分布、磁場に対する応答などの情報が欠かせない。しかし、表面近傍でない、材料内部の磁区の観察は長年に渡る課題であった。そこで研究代表者は、2017年に、物質透過能の高い硬X線領域で磁性に感度の高い磁気光学効果「X線磁気円偏光発光」を発見した。本研究では、この現象を利用した磁気顕微鏡を開発し、実際に方向性電磁鋼板を測定し、内部の磁区の情報が得られることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、表面近傍だけでなく、物質内部の磁区(磁気モーメントが一方向にそろった小さな領域)を観察できる磁気顕微鏡を開発した。金属など不透明な磁性体の内部の磁区観察は長年の課題であり、これまで材料内部の磁区は計算による推定や想像でしかなかった。実験的に内部の磁区を直接観察できれば、磁気特性の理解を進めることにつながり、学術的な意義は大きい。さらに、ここから実際の機能性磁性材料の特性向上につなげることができれば、機能性磁性材料が広く我々の生活に関わっていることから、大きな省エネルギー、省資源効果が期待でき、社会的意義にもつながる。

研究成果の概要(英文)：Functional magnetic materials are widely used in crucial devices that support our life. For instance, electrical steel sheets and/or permanent magnets are important components of motors, generators and transformers. To improve the magnetic properties of these materials, elucidation of the structure and motion of the magnetic domains (small areas in which all the magnetic moments are parallel to each other) under magnetic fields is indispensable. Nevertheless, the measurement of magnetic domains well below the surface of thick samples has been a longstanding problem. X-ray magnetic circularly polarized emission (XMCPPE) is a new magneto-optical effect discovered in 2017, which is highly sensitive to the magnetism of 3d transition metal elements in the hard X-ray regime, where the penetration length is very long. In this study, a magnetic microscope that utilizes XMCPPE was developed and magnetic domains well below the surface of an electrical steel sheet were successfully observed.

研究分野：磁性

キーワード：磁気光学効果 X線磁気円偏光発光 円偏光 特性X線 電磁鋼板 磁区 磁気顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

現代社会の要とも言える電力-動力変換、電力-電力変換においては、機能性磁性材料が重要な役割を果たしている。モーターには永久磁石が、またトランスやモーター、発電機には軟磁性材料である電磁鋼板が用いられている。このようにエネルギー変換の核には機能性磁性材料が存在し、従って、これら機能性磁性材料の高性能化を達成すれば、高効率モーターや発電機、低損失トランス等の実現を通して、省エネルギー、省資源社会の実現に大きく寄与できる [1]。

こうした開発研究で意外にも分かっていないのは、磁性体内部の磁区構造であり、その外場に対する応答である。例えば、トランスに用いられる方向性電磁鋼板は、単純化すると図1に示すようにストライプ状に磁化されている。交流磁場下ではストライプ磁区の幅、つまり、180度磁壁の位置が変動し、高い透磁率と低鉄損を実現している。一方、この磁区中には、図2に示す補助磁区と呼ばれる構造が現れる。補助磁区は内部で90度磁区を形成していると考えられており(図2(b)のA部)、そのため磁歪が大きく、鉄損の要因の一つと考えられている [2]。ところが、従来の測定手法は表面近傍の磁化を測定する手法が主であり、表面の楔状の構造は明らかであるものの、内部の90度磁区とその交流磁場への応答は直接観測されたことはない。このように磁性体内部の磁区構造の観察は、30年以上も解決すべき課題として存在しているのである。

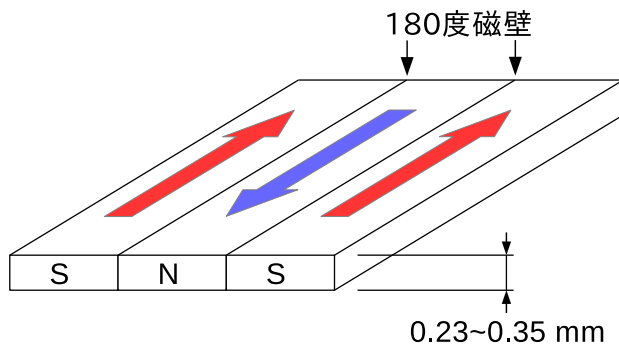


図 1: 方向性電磁鋼板の模式図

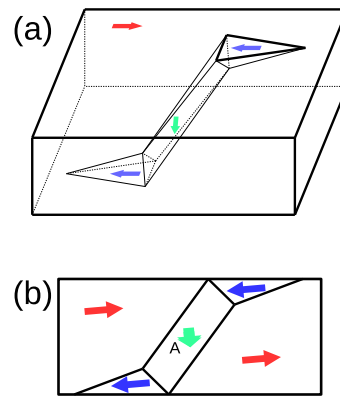


図 2: 補助磁区の予想図。(a) 透視図。(b) 側面図。

2. 研究の目的

本基盤研究の目的は、前述した磁性体内部の磁区構造の観察を達成するバルク敏感な磁気顕微鏡を構築することである。では、どういう手法が使えるだろうか? 現在、物質透過能が高く、かつ磁性に感度がある手法として、中性子散乱と硬 X 線磁気円二色性 (MCD) の開発が進んでおり、それぞれ以下のような特徴がある。なお、求められる空間分解能は、おおよそ、方向性電磁鋼板で $10 \mu\text{m}$ 、無方向性電磁鋼板で $1 \mu\text{m}$ 、永久磁石で 100nm である。

- 中性子散乱: 物質に対する侵入長は極めて長く、この点で内部磁区観察に最も適している。磁気相互作用も小さくなく、特に、干渉計を利用した磁壁観察法の開発が進んでいる。一方、空間分解能に難があり、現状 $100 \mu\text{m}$ 程度である。方向性電磁鋼板を、cm オーダーの広い視野で、数十 μm の微細構造は平均して観測するような研究が進められている [3, 4]。
- 硬 X 線 MCD: 放射光などの高輝度光源を用いれば、 100nm 以下に集光することもでき、空間分解能を高くとれる。一方、元素の吸収端を利用するため、吸収係数が大きくなり、侵入長は短くなる。条件にもよるが、おおよそ $10 \mu\text{m}$ 程度。また、 $3d$ 遷移金属元素 (鉄やコバルトなど) に感度が低いという難点がある。 $5 \mu\text{m}$ 程度の大きさの試料の内部磁区を、 $100\text{-}200 \text{nm}$ 空間分解能で、3 次元的に磁化方位も含めて可視化する結果が発表されている [5, 6]。

このように、それぞれ長所短所があるというのが現状である。そこで、この状況に鑑み、最近、研究代表者は硬 X 線領域で $3d$ 遷移金属元素の磁性に高い感度を示す測定原理の検討を行い、X 線領域の新しい磁気光学効果「X 線磁気円偏光発光 (XMCPe)」の発見に至った [7]。この磁気光学効果は、磁化した試料の発する特性 X 線が円偏光を含んでおり、円偏光の左右およびその円偏光度から発光領域の磁化の向きと大きさ (正確には出射 X 線方向の射影成分) が評価できるというものである。特に強調したいのは、硬 X 線領域にある鉄 $K\alpha$ 線 (6.4keV) の測定において、円偏光度として 18% という高い値が得られたことで、前述した硬 X 線磁気円二色性測定の欠点である $3d$ 遷移金属元素に対する低い感度という問題を大きく改善できたと考えている。

そこで本基盤研究では、この X 線磁気円偏光発光を用いた磁気顕微鏡を実際に構築することを第一の目的とする。さらに、電磁鋼板のような実デバイスの磁区構造の観察を行い、デバイスの性能向上に寄与できる情報を得ることを第二の目的とし、加えて、検出強度の増大を目指した光学素子の改良を実施し、次の開発課題 (1 μm 空間分解能や深さ分解測定、時間分解測定) に向けた基盤を確立することを第三の目的とする。本基盤研究での達成目標を以下に示す。

- (i) X 線磁気円偏光発光を原理とする磁気顕微鏡を実際に構築する。これは、後述するように、入射 X 線を約 10 μm に集光する集光光学素子と、試料から散乱する特性 X 線を集めて平行化し、円偏光解析器に供給する平行化光学素子を整備することにより達成される。
- (ii) 構築した磁気顕微鏡を用い、実デバイスの磁区構造の観察を行う。実デバイスとして、方向性電磁鋼板を測定対象とし、表面近傍のストライプ磁区の観察はもとより、補助磁区内部の 90 度磁区の直接観測を行う。また、準静磁場を印加し、補助磁区の収縮消滅、生成伸長過程を明らかにする。
- (iii) 光学素子の性能向上を行い、検出強度を増大させる。磁区観察は、2 次元、3 次元の走査型測定であり、強度の増大は、統計精度の向上、検出面積、体積の向上に有効であり、高空間分解能化、深さ分解測定にも有用である。移相子と偏光解析器の改良を行う。

3. 研究の方法

本基盤研究で構築する磁気顕微鏡の構成を、図 3 を参照して簡潔に説明する。励起光源としては放射光 X 線を用いる。単色化されて実験ハッチ内に導入された放射光 X 線は、集光光学素子で試料上に集光される。集光光学素子としては屈折レンズを用いる。放射光施設では硬 X 線の集光素子としてよく用いられており、本基盤研究で目標とする 10 μm 程度の集光は容易である。

続いて、試料から散乱する特性 X 線を平行化光学素子で集めると同時に平行光に変換する。下流の移相子や偏光解析器は 100 μrad 程度の高い平行度の光を必要とし、一方、測定強度の観点からは大きな立体角で試料からの特性 X 線を集めたい。この矛盾を解消するのが平行化光学素子であり、幾つか選択肢があるが、本基盤研究では、屈折レンズやキャピラリーに対し透過率や平行度で優れ、10 mrad を超える立体角が得られる、Montel 型の多層膜ミラーを用いる。

平行化された特性 X 線に対しては、円偏光解析器で円偏光度の測定を行う。円偏光解析器は移相子と直線偏光解析器からなる。移相子は円偏光と直線偏光を相互に変換する素子で、ダイヤモンド単結晶の薄板 (500 μm 厚) を用いる。直線偏光解析器は散乱角を 90° 近傍にすることにより、水平直線偏光と垂直直線偏光を選択する素子で、今回測定対象の鉄 $K\alpha$ 線に対してはゲルマニウムの単結晶 (反射面 (400)) を用いる。偏光解析器はエネルギー解析器を兼ねている。検出器はシリコンドリフトディテクタ (SDD) を用いる。

測定は、まず、円偏光解析器で X 線発光スペクトルを測定し、その中から最も円偏光度の大きいエネルギーを選択する。続いて、例えば、直線偏光解析器を垂直直線偏光のみを反射する配置にし、移相子を左円偏光→垂直直線偏光配置と右円偏光→垂直直線偏光配置で切り替えて測定することにより特性 X 線の円偏光度を評価し、ここから試料の発光領域の磁化の向きと大きさを見積もる、そして試料を走査して別の領域の磁化を見積もる、という手順になる。なお、本基盤研究では深さ分解は行わず、深さ積分した磁化を測定する。従来の Kerr 効果磁気顕微鏡や走査型電子顕微鏡 (磁区 SEM) が表面あるいは表面数 μm の情報を得ていたのに対し、表面から 10~20 μm の磁区を見ることができる。

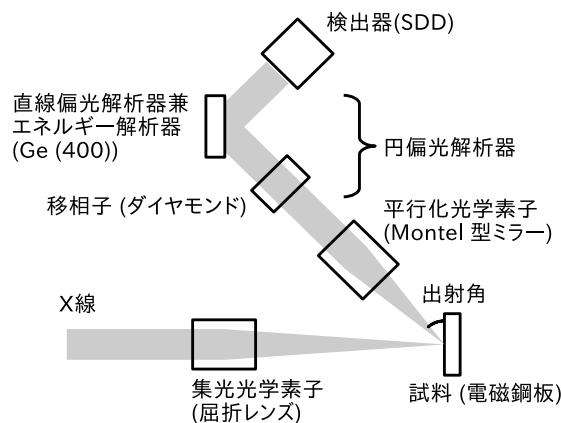


図 3: XMCPE 磁気顕微鏡の構成図

4. 研究成果

(1) XMCPE 磁気顕微鏡の構築

XMCPE 磁気顕微鏡の構築は、大型放射光施設 SPring-8 の量子科学技術研究開発機構専用ビームライン BL11XU で行った。前述したように、XMCPE 顕微鏡は、主に、(i) 集光光学素子、(ii) 平行化光学素子、(iii) 円偏光解析器から構成される。まず、集光光学素子としては樹脂製屈折レンズを用いた。17.3 keV 用と 26 keV 用の 2 本の屈折レンズを用意し、ワイヤスキャンで評価した試料位置での集光サイズは、実験毎にばらつきはあるものの、半値全幅で、 $8 \mu\text{m}(\text{H}) \times 6 \mu\text{m}(\text{V}) \sim 13 \mu\text{m}(\text{H}) \times 12 \mu\text{m}(\text{V})$ となり、概ね目標とする $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ を達成した。試料面に平行な空間分解能はここで得られる。

続いて、平行化光学素子は、前述したように、発散光である試料からの特性 X 線を大きな立体角で集め、これを $100 \mu\text{rad}$ 程度の低発散の平行光に変換し、下流の移相子や偏光解析器に供給する素子で、Montel 型の多層膜ミラーを用いた。受光立体角は $21 \text{ mrad} \times 21 \text{ mrad}$ で設計製作した。一方、反射光の角度発散は++配置の 2 結晶アナライザを用いて実験的に評価し、 $116 \mu\text{rad}$ という値を得た。設計値の $100 \mu\text{rad}$ よりは大きかったものの、この角度発散で計算した円偏光解析器の円偏光変換効率率は 94.6% となり、目標とした 95% に比べて遜色はなく、目標は達成したと判断した。

最後に、円偏光解析器は特性 X 線の円偏光度を評価する構成要素で、移相子と直線偏光解析器からなり、原理実証実験 [7] で用いたものと基本的な構成に変更はない。移相子は $500 \mu\text{m}$ 厚の板状のダイヤモンド単結晶で、 $\pi/2$ または $-\pi/2$ の位相差を生じさせることにより、入射左右円偏光を直線偏光に変換する。また、直線偏光解析器は反射面 (400) のゲルマニウムの単結晶で、文字通り直線偏光度を評価する素子であり、同時にエネルギー解析器を兼ねている。検出器はシリコンドリフトディテクタ (SDD) を用いた。

構築した XMCPE 顕微鏡を用い、まず、XMCPE スペクトルの測定を行った。永久磁石で磁化を飽和させた鉄単結晶を試料とし、鉄 $K\alpha$ 線を測定した。左右円偏光で明瞭に分裂した $K\alpha_{1,2}$ スペクトルが得られ、最大の円偏光度は 25% に達することが分かった。また、平行化光学系の大きな立体角のおかげで、強度についても 2000 counts/s に達し、左右それぞれ 2 秒程度の積算で 1% 程度の高い統計精度で測定ができるようになった。

続いて方向性電磁鋼板を試料とし、磁区測定の実験測定を行った。測定は前述したように、次のような手順で行った。まず、円偏光解析器で X 線発光スペクトルを測定し、円偏光度が最大となる発光エネルギーに移相子と直線偏光解析器を合わせる。そして、直線偏光解析器を垂直直線偏光を反射する配置にし、移相子を左円偏光→垂直直線偏光配置と右円偏光→垂直直線偏光配置で切り替えて測定し、特性 X 線の円偏光度を評価する。ここから試料の発光領域の磁化を見積もり、試料を走査して 2 次元磁区像を得た。

得られた磁区像を図 4 に示す。図 4(a) が $30 \mu\text{m}$ ステップで測定した磁区像で、図 4(b) が $10 \mu\text{m}$ ステップで測定した磁区像である。図 4(b) は図 4(a) の四角で囲った領域に対応する。カラースケールは特性 X 線の円偏光度であり、発光領域の磁化の発光方向射影成分に対応する。方向性電磁鋼板の場合、面内磁化であることが分かっているので、赤い領域が右方向に、青い領域が左方向に磁化している。図 4(a) では、方向性電磁鋼板のストライプ状の基本磁区と補助磁区の楔状の磁区が明瞭に観察できている。また、図 4(b) では、楔状の磁区の詳細が見て取れる。これらの結果は、K. Sugawara *et al.*, *Journal of Applied Physics* **130** 113901 (2021) [8] として発表した。

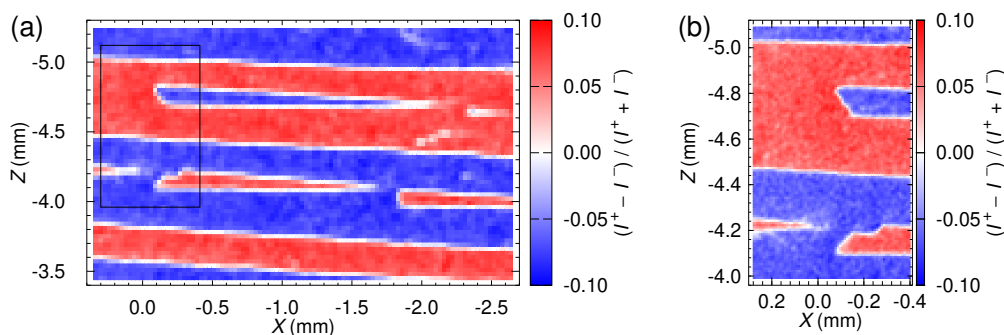


図 4: XMCPE 顕微鏡で測定した方向性電磁鋼板の磁区像。(a) $30 \mu\text{m}$ ステップでの測定。(b) $10 \mu\text{m}$ ステップでの測定。参考文献 [8] からの引用。

(2) 方向性電磁鋼板の磁区観察

構築した XMCPE 顕微鏡を用い、方向性電磁鋼板の磁区観察を進めた。まず、試料内部の磁区の観察を実施した。高エネルギーの入射 X 線 (26 keV) を用いると、X 線の侵入長が長く (108 μm) なる。これにより、試料内部の磁区からの特性 X 線の割合を増やすことができ、内部の磁区の観察が可能になる。方向性電磁鋼板の補助磁区近傍を観測し、内部の 90 度磁区の直接観測に初めて成功した。一方、磁場印加実験も実施した。方向性電磁鋼板に線状に応力を加えた磁区細分化材と呼ばれる試料に対し、準静磁場を印加し、飽和状態からの磁化の反転過程の観察に成功した。これらの成果については、学会等での発表を目指し、準備を進めている。

(3) XMCPE 顕微鏡の改良

Montel 型ミラーの反射光は 4.1 mm \times 4.1 mm と広がっているため、これを十分透過、受光できるように、移相子として大型のダイヤモンド結晶 (6 mm \times 6 mm) を、検出器として大面積 (50 mm²) の SDD を導入した。また、移相子の切替動作を高速化するために、ステッピングモーター駆動を、ピエゾ素子駆動に変更した。

一方、直線偏光解析用のゲルマニウム結晶を湾曲させることにより、適度な歪を与え、反射強度を増大させることも試みた。残念ながら、今回実施した 0.5 mm 厚のゲルマニウム結晶では、有意の歪の導入は出来なかった。

また、今回構築した XMCPE 顕微鏡は、深さ方向には積分して観測するようになっており、二次元の磁区像の測定に限定されている。これは、Montel 型ミラーの受光体積が大きいことによるもので、これを制限すれば、深さ分解した 3 次元的な磁区像の取得が可能になる。具体的な方法を提案し、予備的測定までを実施した。

(4) XMCPE スペクトルの理論的解析

XMCPE は新たに発見された現象であり、発光スペクトルについては、まだ、理論的な解析は行われていない。特に、現時点では金属鉄の測定が行われたのみであり、局在系を扱う単純な原子多重項計算から発光スペクトルを得ることができない。そこで、金属を扱えるよう 3d 軌道をバンドで記述し、加えて、原子内多電子相関を一次摂動まで取り込んだスペクトル計算手法を提案した。相互作用の大きさを適宜選択することにより、左右円偏光に対応したスペクトルの分裂や低エネルギー側に伸びる裾構造など、観測されたスペクトルの特徴を再現することができた。特に、裾構造が 3d バンド内励起によるものであると明確にした点は理論的な功績であり、また、円偏光度が磁気モーメントと発光方向の内積に比例することを示した点は XMCPE の応用展開に有益なものとなった。この結果は、A. Koide *et al.*, *Physical Review B* **102** 224425 (2020) として発表した。

参考文献

- [1] 例えば、高宮ら、JFE 技報 **36**、1–5 (2015).
- [2] D. Küppers *et al.*, *J. Appl. Phys.* **39**, 608 (1968).
- [3] B. Betz *et al.*, *Phys. Rev. Applied* **6**, 024023 (2016).
- [4] B. Betz *et al.*, *Phys. Rev. Applied* **6**, 024024 (2016).
- [5] M. Suzuki *et al.*, *Applied Physics Express* **11**, 036601 (2018).
- [6] C. Donnelly *et al.*, *Nature* **547**, 328 (2017).
- [7] T. Inami, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 137203 (2017).
- [8] K. Sugawara *et al.*, *J. Appl. Phys.* **130** 113901 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Koide Akihiro, Nomura Takuji, Inami Toshiya	4. 巻 104
2. 論文標題 Sum rules of L-edge x-ray magnetic circularly polarized emission for 3d transition metals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094419-1-14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.094419	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 -

1. 著者名 Sugawara Kento, Inami Toshiya, Nakada Takahiro, Sakaguchi Yui, Takahashi Shin	4. 巻 130
2. 論文標題 Bulk-sensitive magnetic microscope utilizing x-ray magnetic circularly polarized emission	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 113901-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0058201	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 -

1. 著者名 Koide Akihiro, Nomura Takuji, Inami Toshiya	4. 巻 102
2. 論文標題 Effects of conduction electron excitation on x-ray magnetic circularly polarized emission in itinerant ferromagnets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 224425-1-14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.102.224425	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8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 小出明広, 野村拓司, 稲見俊哉
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光における発光 X線の角度依存性
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Koide Akihiro, Nomura Takuji, Inami Toshiya
2. 発表標題 Theoretical investigation of x-ray magnetic circularly polarized emission in metallic iron
3. 学会等名 4th QST International Symposium (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Inami Toshiya
2. 発表標題 Magnetic Circular Dichroism in X-ray Fluorescence
3. 学会等名 International Conference on Inelastic X-ray scattering (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲見俊哉、菅原健人、中田崇寛、阪口友唯、高橋真
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光を用いた磁区観察手法の開発
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲見俊哉、菅原健人、中田崇寛、阪口友唯、高橋真
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光を利用した放射光磁気顕微鏡
3. 学会等名 第43回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小出明広、稲見俊哉
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光を用いた2p-3d交換相互作用の抽出
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小出明広、野村拓司、稲見俊哉
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光における 伝導電子の分極効果
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菅原健人、稲見俊哉、中田崇寛、阪口友唯、高橋真
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光を用いた磁気光学顕微鏡の開発
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 磁化測定装置及び磁化測定方法	発明者 稲見俊哉、菅原健人、綿貫徹、小出明広、野村拓司	権利者 量子科学技術研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、願2021-2445	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 磁化測定方法	発明者 稲見俊哉、菅原健人、綿貫徹、小出明広、野村拓司	権利者 量子科学技術研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-58759	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
研究協力者	菅原 健人 (Sugawara Kento)		
研究協力者	小出 明広 (Koide Akihiro)		
研究協力者	中田 崇寛 (Nakada Takahiro)		
研究協力者	阪口 友唯 (Sakaguchi Yui)		
研究協力者	高橋 真 (Takahashi Shin)		

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
---------	---------