

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：34504

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H00349

研究課題名（和文）X線磁気トモグラフィー法を用いた3次元ナノ磁区構造観察による磁性機能の解明

研究課題名（英文）Three-dimensional observation of magnetic domain structures to elucidate the magnetic functionality using X-ray magnetic tomography

研究代表者

鈴木 基寛（Suzuki, Motohiro）

関西学院大学・工学部・教授

研究者番号：60443553

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 35,100,000円

研究成果の概要（和文）：放射光によるX線磁気トモグラフィー法を開発し、磁性体内部のミクロな磁区構造（N極、S極の分布）を非破壊でかつ3次元的に観察する実験手法を確立した。従来は理論計算が主な研究手段であった磁性材料機能と磁区構造との関係を、実験的に解明した。この手法をトポロジカル磁気構造に適用することで、理論的に予測されたスキルミオンひも構造を可視化し、特異点の存在を実証した。また、ネオジム焼結磁石の磁化反転過程における核形成と磁区伝搬の挙動を直接観察し、微細組織構造との相関を議論した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

将来の高密度情報記録・演算素子として有望視されているトポロジカル磁気構造や、モーター材料として重要な焼結永久磁石について、材料内部の磁区の挙動をナノメートルの分解能で可視化できる実験手法を開発した。本研究の成果は、新たな原理に基づく低消費電力の磁気メモリデバイスや、高効率・低燃費のモーターに搭載される高性能永久磁石材料の開発に資するものである

研究成果の概要（英文）：We developed the X-ray magnetic tomography technique at the synchrotron radiation facility SPring-8. This new experimental technique allowed non-destructive three-dimensional observation of the microscopic magnetic domain structure (distribution of N and S poles) inside bulk magnetic materials, clarifying the relationship between the magnetic domain structure and properties of the magnetic materials. Using X-ray magnetic tomography, we successfully visualized the theoretically predicted skyrmion strings and proved the presence of singularity points. The behavior of nucleation and magnetic domain propagation during the magnetization reversal process of neodymium-sintered magnets were directly observed, and the correlation with the microstructure was discussed.

研究分野：放射光による新規手法開発と磁性研究

キーワード：3次元磁区観察 スキルミオン 焼結永久磁石 X線イメージング

### 1. 研究開始当初の背景

磁性体の内部は「磁区」と呼ばれる小さな領域に分かれており、磁区ごとに磁化の向きや大きさが異なる。磁性体の物理的・工学的な性質は、試料の組成や電子状態による物性だけでなく、磁区構造によって大きく支配される。したがって、磁区の形状や幅、外部磁場中での磁区の変化を調べることで磁気異方性や磁気エネルギーの情報を得ることができる。そのため、磁区観察は磁性研究の有力な手段として広く用いられている。

磁区構造の典型的な大きさは数 100 nm から 100  $\mu\text{m}$  のオーダーであるため、観察には何らかの顕微的手法が必要となる。1931 年の Bitter による最初の磁区観察以来、さまざまな磁区観察法が開発され、科学技術や産業の分野で活用されている。磁気力顕微鏡 (MFM)、カー顕微鏡、光電子顕微鏡 (PEEM)、走査軟 X 線顕微鏡 (STXM) 等による数 10 nm から数 100 nm という高分解能での観察も広く普及している。しかし、これらの手法で観察できるのは、試料表面での 2 次元的な磁区構造に限られる。磁性体内部の磁区構造は一般的には 3 次元的な分布を有し、系の磁性と密接に関係している。たとえば、焼結磁石材料の内部のネットワーク磁区やスピントロニクス材料における立体的なスピン配列の解明は、基礎研究において興味深い課題であり、自動車モーター材料や次世代の情報デバイス等への応用に関しても重要である。しかし、研究開始当初の時点では、バルク磁性体の内部の磁区を 3 次元的に観察することができる手法はほとんど存在しなかった。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、磁性体の 3 次元的な磁区構造を実験的に直接観測し、バルク磁性体中の立体的な磁区構造と磁性との関係を解明することを目的とした。従来の磁性研究においても磁区構造観察によって磁性の理解に有用な情報が得られてはいる。しかし、上述したように 2 次元的な磁区観察手法しか利用できないため、研究対象は薄膜試料やバルク磁性体の表面のみに限られていた。すなわち、二次元的な系のみで研究が限定されており、バルク試料の磁区構造に基づく磁性研究は未踏の領域である。そこで本研究では、3 次元的な磁区構造と磁性との関係の解明を通じて、従来の磁性研究の枠組みを大きく拡大することを目指した。これまでに 3 次元的な顕微磁区観察手法はほとんどなく、興味深い磁性を示す実試料・実材料への適用例は皆無である。そのため、本研究は新しい 3 次元磁区観察手法の開発を行うとともに、バルク磁性体の研究の新たな展開を開くという目標のもと行われた。

### 3. 研究の方法

本研究では、放射光による X 線磁気トモグラフィー法を用いて、磁性体内部の磁区を 3 次元的に観察する。われわれのグループでは、研究開始当初の段階で本手法の開発に着手しており、直径 6  $\mu\text{m}$  の GdFeCo マイクロ磁気ディスク内部の磁区構造を 360 nm の空間分解能で 3 次元観察することに成功している。この空間分解能の値は、他のバルク磁性材料系においても内部の磁区を解像するのに十分である。また、外部磁場中での観察が可能であるため、3 次元的な磁区構造が磁場によって変化する様子を解析することができる。そこで本研究では、X 線磁気トモグラフィー法を以下の (1) (2) の興味深い系について適用し、磁性と磁区構造との相関を研究した。また、(3)において手法の高度化を行った。

- (1) 3 次元トポロジカル磁気構造「スキルミオンひも」の直接観察
- (2) 焼結永久磁石材料の核形成、磁区伝搬過程の観察ピン留め効果」の可視化
- (3) 結像型 X 線磁気トモグラフィー法の開発

図 1 に、本研究で用いた走査型 X 線磁気トモグラフィー測定の実験配置を示す [1]。実験は大型放射光施設 SPring-8 BL39XU ビームラインで行った。精密回転ステージによって試料を回転させ、多数の試料角度について走査型の 2 次元透過像を得る。X 線のエネルギーを試料に含まれる磁性元素の共鳴吸収端に設定することで、X 線磁気円二色性 (XMCD) によって、試料中の各磁区の磁化方向に応じた磁気コントラスト画像を得ることができる。測定された二次元磁気投影像に対してトモグラフィー再構成計算を行うことで、3 次元の磁区構造データが得られる。

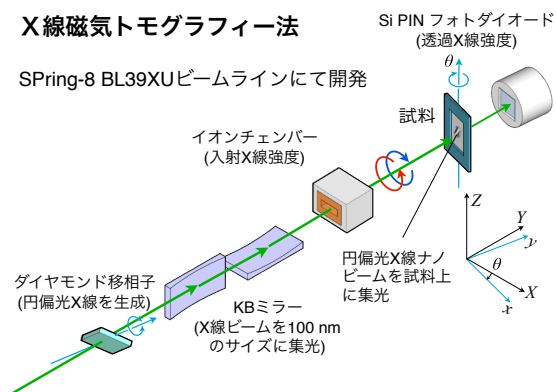


図 1 X 線磁気トモグラフィー法の実験配置 [1]。

### 4. 研究成果

- (1) 近年、磁気スキルミオンと呼ばれるナノ

スケールの渦状スピン構造が発見され盛んに研究が行われている。スキルミオンは理想的な2次元系ではトポロジカルに安定な粒子として振る舞い、結晶表面や薄膜について、ローレンツ電顕、光電子顕微鏡、中性子回折、コヒーレントX線回折等によるスキルミオン渦構造の観察が報告されている。一方で理論計算によれば、バルク結晶のような3次元系では、スピンの竜巻状に配列した、「スキルミオンひも」と呼ばれるひも状の構造が発現することが予測されている。しかし、従来の2次元的なイメージング手法では、スキルミオンひもの3次元的な形状を実験的に可視化することはできなかった。そこで本研究では、室温でスキルミオンひも構造の形成が予測されているMn-Pt-Pd-Sn合金に磁気トモグラフィー法を適用することで、バルク内部のスキルミオンひもの3次元形状の観察を行った。

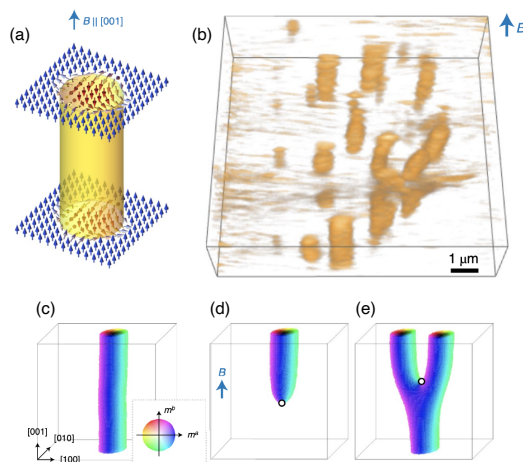


図 2 (a) スキルミオンひも内部のスピン構造。(b)本研究で得られた Mn-Pt-Pd-Sn 内部のスキルミオンひも構造 (c)-(d) 理論予測による様々な形状のスキルミオンひも [2]。

図 2 に、本研究で得られた Mn-Pt-Pd-Sn 合金試料の 3 次元磁区構造を示す [2]。試料の [001] 方向に 437 mT の磁場を印加した状態で、試料内部に形成された直径 500 nm 程度のスキルミオンひも構造を直接に可視化することに成功した。この観察結果から、試料内部をほぼ真っすぐに貫通した形状のスキルミオンひもの存在が初めて実験的に証明された。ひもの内部では、平均として周囲とは逆方向にスピンの配列しており、理論計算の予測と一致している。さらに、途中でひもの形状が途切れたり、分岐したりといった様々な欠陥構造あるいは特異点が存在することが明らかになった。このように、磁気トモグラフィー法によって、未解明だったスキルミオンひもの 3 次元形状の直接観察がはじめて可能となったことは本研究の特筆すべき成果である。今後、スキルミオン形状の外場応答についても直接観察が行えれば興味深く、スキルミオンの情報担体としての性質の理解に貢献することが期待される。

(2) 焼結永久磁石材料の高い保磁力は、その複雑な微細組織構造に起因している。Nd-Fe-B 焼結磁石では、直径数  $\mu\text{m}$  の Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 主相粒子が厚さ数 nm の粒界層で取り囲まれており、主相粒子の直径や結晶方位、粒界層の組成や厚さなどによって磁石性能が大きく左右される。焼結磁石の保磁力は、微細構造に起因する各粒子の磁化反転過程、すなわち逆磁区核生成とその後の磁区伝播に起因している。したがって、マクロな磁気的性質である保磁力を理解するためには、数  $\mu\text{m}$  以下のサイズの磁区構造が減磁過程でどのように変化するかを明らかにする必要がある。そこで、本研究では、商用に近い組成と粒径をもつ Nd-Fe-B 焼結磁石、および微細粒径 Nd-Fe-B 焼結磁石の 3 次元磁区構造の可視化を行った。

商用磁石に近い組成と粒径を持つ Nd-Fe-B 焼結磁石（平均粒径 5  $\mu\text{m}$ 、保磁力 0.95 T）を、直径 15  $\mu\text{m}$ 、高さ 100  $\mu\text{m}$  の円柱形状に微細加工した試料に対して X 線磁気トモグラフィー測定を行い、内部の磁区構造の 3 次元観察に成功した [3]。熱消磁状態と残留磁化状態では磁区構造が大きく異なり、減磁過程では磁化反転が粒子ごとに起こっていることが直接可視化された。しかし、オンラインで試料に印加できる最大 1 T の磁場強度では試料全体を完全に磁化反転させるまでには至らなかった。焼結磁石の減磁過程の一部始終を追跡するには、より高い磁場での X 線磁気トモグラフィー測定の開発が課題として残った。

つづいて行った、平均粒径 1  $\mu\text{m}$  の微細粒径 Nd-Fe-B 焼結磁石（ヘリウムジェットミル法、プレスレス焼結処理にて作製）の観察では、オフラインの電磁石と超伝導磁石を用いて試料に磁場を印加し、残留磁化状態の試料に対して X 線磁気トモグラフィー測定を行った。その結果、試料の減磁曲線に過程に沿って磁石内部に逆磁区が形成され、逆磁場の増加に伴って伝播していく様子を可視化することができた [3, 4]。内部の粒子が単独で磁化反転している様子や、逆磁場が増加するにつれて、逆磁区核を起点として磁区が伝播する様子が観察されており、バルク磁石内部の逆磁区核形成を直接に可視化することに成功した。磁区幅は約 1~2  $\mu\text{m}$  であり、粒子直径 1、2 個分に相当する。さらに個々の結晶粒の磁化反転の様子や周囲の結晶粒の磁区構造との相関を詳しく解析することで、保磁力近傍では一度磁化反転した粒子が再度反転したり、磁化容易軸と直行する方向に磁区が成長したりするなどの、これまで想定されていなかった複雑な磁化反転挙動が局所的に生じていることを示唆する結果が得られた。

(3) 走査型磁気トモグラフィーイメージングの空間分解能や計測時間の改良を目的とし、フレネルゾーンプレート (FZP) による結像顕微光学系による Full-field 結像型のナノ磁気トモグラフィー法の開発を行った。従来の走査型磁気トモグラフィー法よりも空間分解能を向上し、同時に測定時間を短縮することを目的とした。実験は SPring-8 BL37XU で行った。図 3(a) に結像

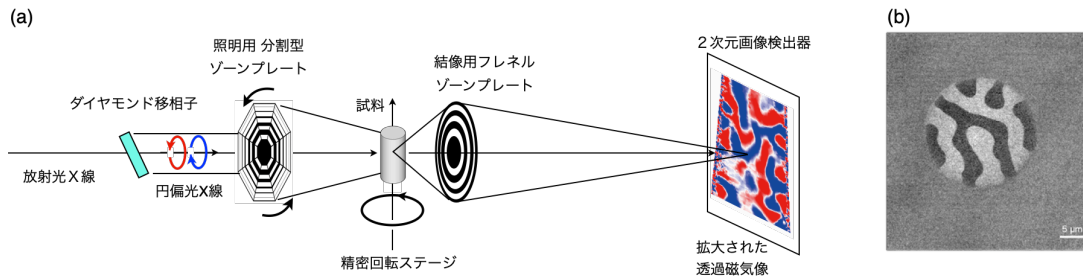


図3 (a) 結像型 X 線磁気トモグラフィー測定の実験配置。(b) GdFeCo 磁気ディスク試料の 2 次元磁気投影像。

型 X 線磁気トモグラフィー測定の実験配置を示す。均一な照明場を得るため、コンデンサレンズに分割型 FZP を用い、X 線光軸を軸として 1 Hz の速度で回転させた。試料は低偏心回転軸、フィードバック機構付き精密並進軸から成るステージ上に設置した。試料の下流に対物 FZP を配置し、試料の透過像をビームモニタ検出器のシンチレータスクリーン上に結像投影した。試料-FZP 距離および FZ-カメラ距離から、7 keV の X 線エネルギーに対して 300 倍の結像倍率が得られた。Ta テストチャートの撮像結果では 100 nm のライン&スペース構造が解像できており、投影像の空間分解能は 100 nm 以下であると評価した。

構築した結像型磁気トモグラフィー測定系を用いて、GdFeCo 合金マイクロディスク試料に適用した。従来の走査型 X 線磁気トモグラフィーでは  $20 \times 10 \mu\text{m}^2$  程度の視野での測定に限られていたが、結像型では  $40 \times 40 \mu\text{m}^2$  の視野での Full-field 磁区観察が可能となった (図 3(b))。空間分解能はこれまでの 1/3 程度に改善され、画像の測定時間は 20 分から 2 分へと 1/10 に短縮された。3 次元像の空間分解能は 160 nm であった。一方で、ビームモニタの CCD カメラ由来と思われる粒子状ノイズ、および縞状のアーティファクトが XMCD 投影像に重畳する問題があった。また、再構成像には高周波ノイズが顕著に見られるため、画像精度の改善が今後の課題である。測定画像の精度向上および測定効率向上には、直接撮像型 X 線画像検出器の使用が有効と考えられる。

本研究では、トポロジカルスピン配列に起因するスキルミオンひも、および焼結磁石の実材料に対して、バルク試料内部の磁区構造を初めて実験的に観察した。スキルミオンひもについては理論的に予測されていた様々な形状のスキルミオンひもや、特異点の存在を直接に可視化した。微細流焼結磁石試料については、減磁曲線に沿った磁化反転過程を追跡することで、試料内部の反転核の生成と磁区伝播の挙動を可視化することに成功した。X 線磁気トモグラフィー実験で得られた 3 次元磁区構造は、マイクロマグネティックスシミュレーションの計算モデルとして、実試料の微視的な磁化反転挙動を理解するために有用な情報を提供する。今後、X 線磁気トモグラフィー法は、実用磁石材料の磁化反転過程と材料組織の相関解明のためのツールとして、様々な高性能永久磁石の 3 次元磁区観察へ適用されることが期待される。実験技術上の課題として、オフラインでの磁場印加ではなく、数テスラの強磁場をオンラインで印加した条件での磁気トモグラフィー測定の開発が挙げられる。結像型 X 線磁気トモグラフィー法の開発においては、最近開発された Advanced KB ミラー [5] を結像素子に用いる方法が有望であり、さらなる効率と空間分解能向上が期待できる。

#### <引用文献>

- ① M. Suzuki, K.-J. Kim, S. Kim, H. Yoshikawa, T. Tono, K. T. Yamada, T. Taniguchi, H. Mizuno, K. Oda, M. Ishibashi, Y. Hirata, T. Li, A. Tsukamoto, D. Chiba, and T. Ono, “, Appl. Phys. Express 11, 036601 (2018).
- ② S. Seki, M. Suzuki, M. Ishibashi, R. Takagi, N. D. Khanh, Y. Shiota, K. Shibata, W. Koshibae, Y. Tokura, and T. Ono, Nat. Mater 21, 181-187 (2022).
- ③ 鈴木基寛, 岡本 聡, 日本磁気学会誌「まぐね」, Vol. 17, No. 4, 187 (2022).
- ④ M. Takeuchi, M. Suzuki, S. Kobayashi, Y. Kotani, T. Nakamura, N. Kikuchi, A. Bolyachkin, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, K. Hono, Y. Une, and S. Okamoto, “, Npg Asia Mater 14, 70 (2022).
- ⑤ J. Yamada, S. Matsuyama, R. Hirose, Y. Takeda, Y. Kohmura, M. Yabashi, K. Omote, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Optica 7, pp. 367-370 (2020).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 M. Suzuki, S. Okamoto	4. 巻 1
2. 論文標題 Three-dimensional visualization of magnetization reversal behavior inside a high-performance Nd-Fe-B permanent magnet	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 SPRING-8/SACLA Research Frontiers 2022	6. 最初と最後の頁 60 ~ 61
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 Takeuchi Makoto, Suzuki Motohiro, Kobayashi Shintaro, Kotani Yoshinori, Nakamura Tetsuya, Kikuchi Nobuaki, Bolyachkin Anton, Sepehri-Amin Hossein, Ohkubo Tadakatsu, Hono Kazuhiro, Une Yasuhiro, Okamoto Satoshi	4. 巻 14
2. 論文標題 Real picture of magnetic domain dynamics along the magnetic hysteresis curve inside an advanced permanent magnet	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-022-00417-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 鈴木基寛、岡本聡	4. 巻 17
2. 論文標題 放射光X線磁気トモグラフィーによる永久磁石材料内部の3次元磁区構造観察	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本磁気学会誌「まぐね」	6. 最初と最後の頁 187 ~ 193
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 鈴木基寛	4. 巻 18
2. 論文標題 放射光X線を用いた磁気分光とイメージング	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 日本磁気学会誌「まぐね」	6. 最初と最後の頁 87 ~ 97
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 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 -

1. 著者名 鈴木基寛	4. 巻 No. 54
2. 論文標題 X線磁気トモグラフィーによる3次元磁区構造観察	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 X線・EUV結像光学ニュースレター	6. 最初と最後の頁 11 ~ 15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計11件(うち招待講演 6件/うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Motohiro Suzuki
2. 発表標題 Magnetic tomography imaging using a scanning hard X-ray nanoprobe at BL39XU SPring-8
3. 学会等名 The First Experiments Workshop for the 4-ID POLAR Beamline at the Argonne Photon Source (APS) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Motohiro Suzuki
2. 発表標題 Three-dimensional observation of magnetic microstructures by scanning X-ray magnetic tomography
3. 学会等名 2023 KPS Fall Meeting, Pioneer Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Suzuki Motohiro
2. 発表標題 Three-dimensional visualization of magnetic domain structures using X-ray magnetic micro-tomography
3. 学会等名 XOPT2022 International Conference on X-ray Optics and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Suzuki Motohiro
2. 発表標題 Three-dimensional visualization of magnetic domain structures by X-ray magnetic tomography
3. 学会等名 ICMFS-2022, 24th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木基寛、関真一郎、石橋未央、高木里奈、Nguyen Duy Khanh、塩田陽一、柴田基洋、小椎八重航、十倉好紀、小野輝男
2. 発表標題 X線磁気トモグラフィーによるスキルミオンひも構造の3次元形状の可視化
3. 学会等名 第35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 2022年

1. 発表者名 関真一郎、鈴木基寛、石橋未央、高木里奈、Nguyen Duy Khanh、塩田陽一、柴田基洋、小椎八重航、十倉好紀、小野輝男
2. 発表標題 磁気スキルミオンストリングの3次元形状の観察
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Motohiro Suzuki
2. 発表標題 Visualizing three-dimensional magnetic domain structures by synchrotron-based magnetic X-ray microtomography
3. 学会等名 The 5th International Conference on Materials Engineering and The 6th International Conference on Nanotechnology and Nanomaterials in Energy (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木基寛
2. 発表標題 放射光によるNd-Fe-B焼結磁石の二次・三次元磁区解析
3. 学会等名 日本学術振興会 結晶成長の科学と技術 第161委員会第116回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 Motohiro Suzuki	4. 発行年 2023年
2. 出版社 International Union of Crystallography	5. 総ページ数 800
3. 書名 International Tables for Crystallography Vol. I (X-ray Absorption Spectroscopy and Related Techniques)	

1. 著者名 Motohiro Suzuki, Eds. Akinobu Yamaguchi, Atsufumi Hirohata, Bethanie Stadler	4. 発行年 2021年
2. 出版社 Elsevier	5. 総ページ数 784
3. 書名 Nanomagnetic Materials, Fabrication, Characterization and Application	

〔産業財産権〕



〔その他〕

共同発表)最先端の永久磁石材料内部の微小磁石の振舞いを3次元で透視  
<https://www.kwansei.ac.jp/news/detail/4695>  
 鈴木基寛・工学部教授ら研究グループが最先端の永久磁石材料内部の微小磁石の振舞いを3次元透視観察に成功  
<https://www.kwansei.ac.jp/news/detail/4696>  
 磁石の中の竜巻(スキルミオンひも)の三次元形状の可視化に成功~新しい磁気情報処理手法の開拓に期待  
<https://www.kwansei.ac.jp/news/detail/4500>

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
研究分担者	関 真一郎  (Seki Shinichiro)  (70598599)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授   (12601)	
研究分担者	小野 輝男  (Ono Teruo)  (90296749)	京都大学・化学研究所・教授   (14301)	

	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	岡本 聡  (Okamoto Satoshi)		

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