

# 科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料

## 〔令和4（2022）年度 中間評価用〕

令和4年3月31日現在

研究期間：2020年度～2024年度  
課題番号：20H05659  
研究課題名：原子スケール局所磁場直接観察手法の開発と磁性材料界面研究への応用  
研究代表者氏名（ローマ字）：柴田 直哉 (SHIBATA, NAOYA)  
所属研究機関・部局・職：東京大学・大学院工学系研究科・教授  
研究者番号：10376501

### 研究の概要：

本研究では、原子分解能磁場フリー電子顕微鏡法をベースとして、磁性材料の局所領域における原子・電子構造と電磁場分布を実空間観察するための新たな電子顕微鏡法を開発し、この手法を磁石材料、スピンドバイス、鉄鋼材料、トポロジカル材料、セラミック材料などの局所構造解析に応用することで、新規磁性材料創成のための界面設計・制御指針の構築を目指す。

研究分野：材料工学

キーワード：走査透過電子顕微鏡、電磁場、界面、磁性材料、鉄鋼材料

### 1. 研究開始当初の背景

材料の磁気的特性は、原子の磁気モーメントに加えて、その協同現象によって形成される磁区及びその境界である磁壁の運動によって理解される。このような微視的磁性構造は材料内部に不可避免的に存在する界面、粒界、転位、点欠陥などの局所構造の影響を強く受けることが知られており、磁性材料の特性を飛躍的に向上するためには、材料組織的的確な制御による磁性構造の制御が極めて重要となる。一方、材料微細組織と電磁場を原子レベルで直接観察・分析する上で極めて有力な手法が、微分位相コントラスト走査透過電子顕微鏡法(DPC STEM)である。これまでの研究により、DPC STEMは磁性材料内部の磁場分布観察に極めて有効であり、磁区構造や磁気スキルミオンの可視化が達成されている。しかし、電子顕微鏡における磁場観察の超高分解能化には極めて大きな障害が存在する。それは、電子顕微鏡では強磁場をレンズとして用いており（磁界レンズ）、試料を強磁場中（ $>2T$ （テスラ））に挿入して観察しなければならないという制約である。磁性材料をこのような強磁場中に挿入すれば、その構造が変化したり、破壊されてしまうことは明白であり、この問題が電子顕微鏡による原子レベルの磁性材料観察を阻む長年の大きな問題であった。最近、研究代表者らのグループでは、新しいコンセプトの磁場フリー対物レンズを開発し、世界で初めて磁場フリー条件における原子分解能 STEM 観察を実現した。この原子分解能磁場フリー電子顕微鏡と DPC STEM を高度に融合できれば、局所における原子レベルの磁場分布観察が期待できる。このような手法が確立すれば、材料界面における磁気・磁区構造を直接可視化できる新たな計測技術になることが期待でき、磁性材料開発に画期的な計測手法を提供できると考えられる。

### 2. 研究の目的

本研究では、研究代表者らが世界で初めて開発に成功した原子分解能磁場フリー電子顕微鏡法をベースとして、磁性材料の局所構造（界面、粒界、表面、転位、点欠陥等）における原子・電子構造と局所電磁場分布の実空間観察を実現する新たな原子分解能電子顕微鏡手法を開発する。更に、この手法を磁石材料、スピンドバイス、鉄鋼材料、トポロジカル材料、セラミック材料などの局所構造解析に応用することで、原子レベルの局所構造と磁性との相互作用を本質的に明らかにすることを目指す。これにより、局所構造による機能発現メカニズムを本質的に解明し、これまでにない新しい磁性材料設計指針を構築することを目指す。更に、これまで電子顕微鏡による観察が不可能とされてきた原子磁場、界面磁気構造、電気分極などの直接観察を実現し、最先端計測から磁性材料研究の進展とデバイス応用を強力に牽引し、広く社会・産業界に貢献することを最終的な目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では、研究代表者らが独自開発してきた原子分解能磁場フリー電子顕微鏡を DPC STEM 法と高度に融合することにより、超高分解能電磁場定量観察手法の開発を行う。具体的には、多分割型検出器及びピクセル型検出器を用いた電子回折図形の重心定量検出による電磁場定量観察手法開発及び電場・磁場の切り分け手法の開発を行うとともに、マルチスライス計算に基づく電磁場観察理論計算手法を確立し、DPC STEM 像から局所電場・磁場を定量的に抽出するための基盤技術を確立する。また、原子分解能磁場フリー電子顕微鏡に TEM 収差補正器を導入し、磁場フリー環境における超高分解能 TEM やローレンツ TEM 機能を実装し、磁気ダイナミクス観察を実現する。更に、開発した手法を様々な磁性材料（希土類磁石、フェライト系磁石、電磁鋼板、スピンドバイス、磁気スキルミオン等）に応用展開し、局所構造と磁気特性との相関性を解明する。このような研究を通じて、高性能磁性材料開発のための新たな界面設計・制御指針の構築を行う。

#### 4. これまでの成果

これまでに以下の特筆すべき成果が得られている。

##### ①反強磁性体中の原子磁場の実空間観察 (Y. Kohno *et al.* *Nature* 2022)

原子分解能磁場フリー電子顕微鏡と DPC STEM 観察を高度に融合することにより、ヘマタイト( $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 結晶中の反強磁性構造に起因する原子磁場分布の実空間観察に成功した。実験で得られた原子分解能 DPC 信号から微弱な磁場信号のみを抽出するため、画像フィルターを開発し電場成分を除去し、更にユニットセル平均することで磁場像の S/N 比を向上した。その結果、Fe 原子層ごとの反平行原子磁場の観察が可能になった。この観察結果は、入射電子線に対する原子磁場の影響を考慮したマルチスライス像計算の結果と定量的に良い一致を示した。更に、低温に試料を冷却し同様の観察を行った結果、原子構造には変化はないものの、モーリン転移に伴うドラスティックな磁気構造変化を原子磁場の変化として観察することにも成功した。また、詳細な像理論から、観察された原子磁場コントラストの形成メカニズムの定量的な解釈も可能となり、原子磁場観察を実験、理論両面から実証できた。

##### ②磁気スキルミオンと欠陥の相互作用 (T. Matsumoto *et al.* *Front. Phys.* 2022, *J. Magn. Magn. Mater.* 2021)

磁気スキルミオンを形成する FeGe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> 試料の表面に電子線によるナノレベルの小孔を形成し、その小孔によるヘリカルスピン構造のピンニング現象を利用して、ヘリカルスピン構造から磁気スキルミオンへの核生成過程の可視化に成功した。理論計算で予測されていたように、中間段階ではアンチスキルミオン状のスピン構造を経て核生成することがわかった。また、同様に Co<sub>8</sub>Zn<sub>8</sub>Mn<sub>4</sub> の表面に連続的にナノレベルの小孔を形成することで、その形状に応じて様々なスキルミオン配列・構造を形成できることを示した。本結果は、磁気スキルミオン制御における表面欠陥の有効性を示すものである。

この他、希土類磁石の磁壁直接観察、磁気デバイスモデル界面の電場・磁場分離、電磁鋼板粒界の原子構造解析も着実に研究が進展しており、最終年度までに磁性材料界面設計指針の構築を目指したい。

#### 5. 今後の計画

今後も引き続き原子レベルの局所磁場定量観察手法の開発・高度化を行うとともに、磁気ダイナミクス観察を可能にする装置開発を推進し、これら新手法をタイムリーに様々な磁性材料・デバイス解析に応用展開する。これらの研究で得られた知見を統合し、高性能磁性材料開発のための新たな界面設計・制御指針の構築を最終的な目標として進める。

#### 6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

1. Y. Kohno, T. Seki, S.D. Findlay, Y. Ikuhara and N. Shibata\*, “Real-space visualization of intrinsic magnetic field of an antiferromagnet,” *Nature* **602**, 234-239 (2022).
2. T. Mawson, D.J. Taplin, H.G. Brown, L. Clark, R. Ishikawa, T. Seki, Y. Ikuhara, N. Shibata, D.M. Paganin, M.J. Morgan, M. Weyland, T.C. Petersen and S.D. Findlay\*, “Factors limiting quantitative phase retrieval in atomic-resolution differential phase contrast scanning transmission electron microscopy using a segmented detector,” *Ultramicroscopy* **233**, 113457 (2022).
3. T. Matsumoto\* and N. Shibata, “Confinement of Magnetic Skyrmions to Corrals of Artificial Surface Pits with Complex Geometries,” *Front. Phys.*, **9**, 774951 (2022).
4. T. Matsumoto\*, Y.-G. So, Y. Ikuhara and N. Shibata, “Direct visualization of nucleation intermediate state of magnetic skyrmion from helical stripes assisted by artificial surface pits,” *J. Magn. Magn. Mater.* **531**, 167976 (2021).
5. K. Ooe, T. Seki\*, Y. Ikuhara and N. Shibata\*, “Ultra-high contrast STEM imaging for segmented/pixelated detectors by maximizing the signal-to-noise ratio,” *Ultramicroscopy* **220**, 113133 (2021).
6. T. Seki\*, Y. Ikuhara and N. Shibata\*, “Towards quantitative electromagnetic field imaging by differential phase contrast scanning transmission electron microscopy,” *Microscopy*, **70**, 148-160 (2021).
7. D. Hopkinson, T. Seki, N. Clark, R. Chen, Y. Zou, A. Kimura, R. Gorbachev, T. Thomson, N. Shibata and S. Haigh\*, “Nanometre imaging of Fe<sub>3</sub>GeTe<sub>2</sub> ferromagnetic domain walls,” *Nanotech.*, **32**, 205703 (2021).

他 6 件

#### 7. ホームページ等

<https://www.saaf.t.u-tokyo.ac.jp/>

プレスリリース：世界初の原子分解能電子顕微鏡で磁力の起源をとらえた

[https://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws\\_202202100952515855639294.html](https://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_202202100952515855639294.html)