

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 12 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23246074

研究課題名(和文)電気自動車モータ用磁性材料開発のための多機能分析磁気光学プローブシステムの構築

研究課題名(英文) Construction of a multi-functional analyzer with magneto-optical probe system for the development of magnetic material of electric car motors

研究代表者

齊藤 伸 (SAITO, SHIN)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50344700

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 25,600,000円、(間接経費) 7,680,000円

研究成果の概要(和文)：我が国で戦略的に進められている永久磁石用材料や、環境負荷軽減のための軟磁性箔帯材料の迅速な開発に供するため、多機能分析磁気光学プローブシステムを構築した。まず(1)イメージングプレートを用いた「磁性材料からの漏洩磁界の空間分布を可視化する技術」、ならびに(2)「局所領域の磁気光学効果スペクトル(回転角・楕円率の波長依存性)を1回の磁界掃引の間に分光検出する技術」をそれぞれ確立した。続いてこれらの技術と、既得の「磁性材料の磁化ベクトルの可視化技術」とを組み合わせることで評価システムを完成させた。

研究成果の概要(英文)：In order to rapidly develop the national strategic materials used for permanent magnet and thin magnetic ribbons which could reduce the environment load, a functional analysis system with magneto-optical probe was developed. First, we had successfully established the following techniques; (1) visualization of the spatial distribution of the leak magnetic field from a magnetic material by an imaging plate, and (2) spectroscopic detection of magneto-optical effect spectrum (wave length dependence of rotation angle and ellipticity) from local area with a single sweep of the magnetic field. Then, this evaluation system was completed with combining these techniques with a technique of visualization of local magnetic moment direction in magnetic domain of the magnetic material.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・計測工学

キーワード：磁気カー効果 磁区観察 磁界検出 磁気光学スペクトル 表面プラズモン 偏光顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

我が国の自動車メーカーは地球環境に優しい輸送手段として電気自動車(EV)およびハイブリッドカー(HEV)に注目し、世界に先駆けて技術開発・製品投入を進めてきた。EVやHEVの基幹部材である駆動用大型モータは軟磁性材料と永久磁石材料との組み合わせから成り立っており、これらの磁性材料の特性向上がモータの高効率・省エネルギー化に貢献している。軟磁性材料としては積層型の電磁鋼板材料が広く用いられる。損失を抑えつつ大振幅のトルクでモータを線形駆動させるためには異常渦電流損の低減が重要であり、鋼板を巻心化した状態での磁気異方性制御・磁区構造制御が鍵となる。一方永久磁石の性能指標である「最大エネルギー積: $(BH)_{max}$ 」を高めるには、室温で大きな飽和磁化と大きな保磁力とを兼ね備える材料開発が急務である。現在市場に出荷されているNd-Fe-B磁石には、保磁力向上のためDyが添加されている。尖閣列島の領有に関わる政治問題で特にクローズアップされたように、Dyは鉱石中の含有量が少なく大部分が中国から採掘される資源リスクの高い元素である。したがって、低損失軟磁性材料ならびに省・脱希土類元素に基づく磁石材料の創製は、革新的省エネルギー効果が期待され、かつ資源戦略性に優れるため、国策として精力的に行われている材料開発研究である(元素戦略 Pro.: 文科省, 希少金属代替材料開発 Pro.: NEDO)。

モータ用磁性材料の開発に際しては、金属材料の選定ならびに作製プロセスの最適化による微細組織制御技術の確立に加え、局所的な磁気異方性・磁区構造の厳密な制御が極めて重要である。また単に個々の材料特性の向上のみならず、モータとしての最終形態に近い状態での特性向上を計らねばならない。モータの動作原理に目を向けると、固定子-回転子間の漏洩磁界および磁界勾配が特性を左右するため、デバイス内では最適な漏洩磁界空間分布を作り出す必要がある。さらに動特性に注目するとモータの定常回転時での特性だけでなく負荷や励磁条件変化時等の過渡状態でも効率的にデバイスを制御することが今後益々必要となると考えられ、非接触での動的特性評価も重要な課題である。しかしながらこれらを実用できる分析システムは見あたらず開発が加速できていないのが実情である。

反射面内に磁化が配向している磁性材料の磁区構造は、原理的には縦カー効果を利用した偏光顕微鏡にて一括観察可能である。しかしながら研究代表者が関連研究を始めた当初(2001年)、偏光状態を維持しつつ試料を均一に照明する技術・装置設計指針ならびに、局所領域からの反射光に含有される極微量の偏光情報を高感度に検出する技術・装置設計指針が確立していなかったため、市販の偏光顕微鏡に対し研究者自らが改良を施して試行錯誤的に観察を行っているのが実状であった¹⁻²⁾。

これに対し研究代表者は、高倍率化と高明暗比化との両立を図った光学系の設計を行い、高

明暗比縦カー効果顕微鏡を完成させた。特に有効であった点は照明法(ケーラー照明法)の応用である。この方法の本来の特徴の一つは開口絞りにより高次光の量を調整して視野の明るさを制御できることである。研究代表者はこの原理を偏光特性維持の用途に応用展開し、高明暗比磁区像の取得に成功した。すなわち、開口絞りを極端に小口径化することにより、対物レンズの後側焦点位置に結像される開口の像を極小化できる。このことにより、偏光特性を良好に維持できる「対物レンズの辺縁部」のみに白色光を入射させ得る結果、視野内の均一照明と良好な直線偏光性を実現できることを見出した³⁾。同時に研究代表者は、縦カー効果顕微鏡により得られる磁区履歴画像の動画から、CCDカメラ画素の輝度履歴を用いて局所領域の磁化過程を検出する方法も提案した。具体的には画素毎の暗電流および感度のばらつき、入射光学系の不完全性に伴う視野内の光量・偏光ムラ、光学素子上の異物に起因する光量ムラを補正する係数を算出し、補正輝度の合算により指定領域の輝度履歴曲線を得る手法を確立した。更に申請者は、直交する2方向から時分割法にて入射光を落斜させられる光学系を設計し各軸方向の磁気光学効果の方向余弦を検出することにより局所磁化方向を検出可能な縦カー効果顕微鏡を実現した⁴⁾。これらの顕微鏡拡大光学系の技術を縮小光学系に展開し、mmオーダーの広域視野にわたる磁区および磁化ベクトル方向観察装置も実現し、デバイス形状のままの深い焦点深度の磁区観察も可能とした⁵⁾。磁気光学効果は非接触かつ高速の評価プローブであることに留意しつつ前述した社会背景を鑑みると、既得技術に加えて、磁性材料の局所領域からの漏洩磁界の検出、ならびに組織毎の磁気特性の抽出が可能となれば、モータ材料開発の総合評価システムを提案できることがわかる。

- 1) A. Hubert et al., "Magnetic Domains", Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1998).
- 2) 高城 他, 日本応用磁気学会誌, 19, 269 (1995).
- 3) 齊藤伸, 科研費 若手研究(A), No. 17686034
- 4) 齊藤伸, 科研費 基盤研究(B), No. 19360183
- 5) 齊藤伸, 科研費 若手研究(A), No. 21686037

2. 研究の目的

本研究の目的は、「磁性材料からの漏洩磁界の空間分布を可視化する技術」、ならびに、「局所領域の磁気光学効果スペクトル(回転角・楕円率の波長依存性)を短時間で分光検出する技術」をそれぞれ確立し、既得した「磁性材料の磁化ベクトルの可視化技術」と組み合わせ、多機能分析磁気光学評価システムを3年の研究期間内に構築することにある。

3. 研究の方法

本研究では、表面プラズモンを励起した貴金属薄膜を用いて局所空間磁界の「一括イメージング」法を確立し(平成23年度: 空間磁界の可視化)、白色光入射一検出側分光光学系を採用

し、変調光を時間分解検出することによって 0.1 度以下の小さな偏光変化をスペクトルとして一括検出する手法を検出・確立し (平成 24 年度: 磁気光学効果の分光検出), 「空間磁界の可視化」, 「磁化ベクトル可視化」, ならびに「材料の局所領域の磁気光学スペクトル検出を短時間で可能とする, 磁気光学効果をプローブとした評価装置」を構築し, モータ用磁性材料の多角的・総合的解析ツールを供して, 材料開発を支援する (平成 25 年度).

(1) 空間磁界の可視化

表面プラズモン励起貴金属薄膜にみられる磁気光学効果の磁界に対する線型応答の増強現象を, 局所磁界の一括イメージングに適応した. まずクレッチマン配置 (図 1) にて表面プラズモン共鳴励起に最適な材料と膜厚構成を検討した. 次に油浸型の顕微鏡光学系に適用し, 空間磁界のマッピングを試みた. 像の品質が改善されない場合に備え, ファラデー薄膜に金属反射膜を成膜したイメージングプレートを作製し, 空間磁界によるイメージングプレートの磁化像を磁区観察顕微鏡光学系にて一括撮像する方法も計画した.

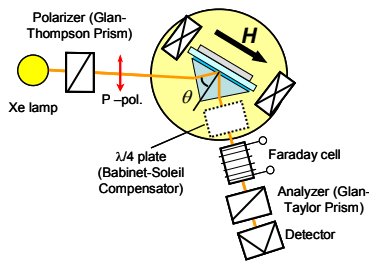


図1. SPR援用 (クレッチマン配置) 縦カー効果測定系.

(2) 磁気光学効果の分光検出

永久磁石のように複数の磁性相の多結晶からなる複合組織の場合, 各々の相の磁気特性を個別に評価できれば, 機能性材料の作製プロセス開発に極めて有用である. 強磁性材料の場合, 相毎に磁気光学効果の波長依存性が異なるため, 磁気光学スペクトルの計測は強磁性材料と組織設計のキャラクタリゼーションの良いツールとなる. 課題は, 測定に要する時間である. 従来の磁気光学スペクトルの測定法は「白色光を単色化して試料に入射させ, 磁界を掃引して磁気光学効果の履歴曲線を取得する」という操作を

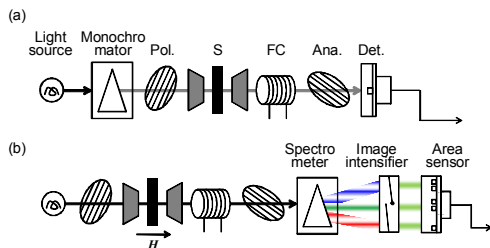


図2. 磁気光学効果測定系 (ファラデーセル変調法) の模式図. (a) 従来法. 単色化した光を試料に入射させている. (b) 提案した方法の一つ. 試料には白色光を入射し, 検出器の直前に分光器を配置してアレイセンサでスペクトルを一括取得する.

波長毎に反復する手法による (図 2a). 測定時間は波長数に比例するため, 高波長分解能化と測定時間の短縮化との両立が求められていた. 本研究では, 白色光を試料に入射し検出側で分光した後, エリアセンサやアレイセンサを用いて波長情報を空間情報に変換してスペクトルを検出する手法を提案し (図 2b), 実際に微小偏光変化スペクトルを検出する.

(3) 多機能分析磁気光学評価システムの構築

前述の偏光顕微鏡光学系と, 磁界検出光学系, 磁気光学スペクトル検出光学系を一つに組み込み, 多機能分析磁気光学評価システムを構築する.

4. 研究成果

(1) 空間磁界の可視化

表面プラズモン共鳴角付近 (SPR) における磁気光学効果が磁界強度に敏感であるという知見を磁界検出に積極的に適用し, センサーイメージングデバイスの構築を目指した. その結果, 波長 633 nm における Au 単層膜の反射率と磁界掃引時の履歴曲線の傾きの入射角依存性が, SPR において, 楕円率・回転角の磁界線型応答成分 (傾き) の, 回転角はベル型 (最小値: -0.53 度/kOe), 楕円率は分散型 (最大・最小値は 0.23 度/kOe, -0.31 度/kOe) の共鳴構造をとることを見出した (図 3). これは Au 薄膜の基底となるガラスによる極僅かな磁気光学効果が Au 膜による SPR により増強されることに依る (成果論文①). この特性を基に, 走査型顕微鏡のプローブ先端部にクレッチマン配置させた Au 単層膜をとりつけたところ, 永久磁石からの漏洩磁界の検出に成功した.

そこで磁界分布の一括撮像に取り組んだ. すなわち対物レンズの辺縁部のみには波長 633 nm の単色光を入射させ油浸法を適用したケーラー照明を用いて, 偏光像の解析 (空間磁界像の

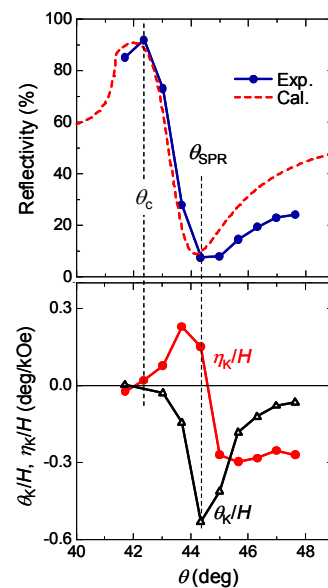


図3. Au (30 nm) 薄膜の (上段) 反射率 (下段) 縦カー効果磁界履歴曲線の傾きの入射角度依存性. ほぼ θ_{SPR} を中心として, 共鳴構造が見られる.

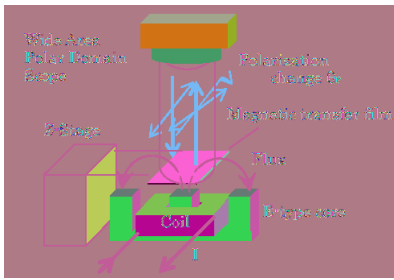


図4. 励磁したE型カットコアの端面からの漏洩磁束分布を検出するための偏光光学系。漏洩磁界によりイメージングプレート（薄膜状の磁界転写材料）に磁気光学効果を生じさせ、この磁気光学偏光像をCCDカメラで結像する。

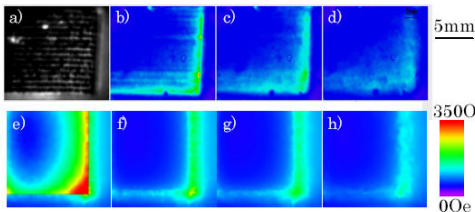


図5. E型カットコアの観察像。a) は光学像。b-d) は端面からの高さが b) 0 mm, c) 0.2 mm, d) 0.5 mm の場所の偏光像。これが磁界分布に対応する。e-h) は端面からの高さが e) 0 mm, f) 0.05 mm, g) 0.2 mm, h) 0.5 mm の磁界分布を計算した結果である。

解析)を試みたところ、ccd カメラで取り込まれる画像の一部に磁界分布のコントラストが結像されることがわかった。表面プラズモン共鳴の強さは、波長や入射角条件に著しく強く依存する。顕微鏡の入射・結像光学系では、この共鳴条件を視野内全ての位置で厳密に満たすことが難しいため、本手法は一括撮像法よりも走査型法に好適であることがわかった。

次に薄膜プレート状の磁界転写ファラデー材料（イメージングプレート）に磁気光学効果を生じさせ、この磁気光学偏光像を磁区観察光学系で観察する手法を試みた。イメージングプレートにはガリウムガドリニウムガーネット基板上にYBiFe ガーネットを設けたものを用い、非磁性金属膜を反射膜として成膜した。図4に観察に用いた偏光光学系の模式図を示す。図5が観察された磁界分布像である。カットコア端面からの高さ方向を変化させながら撮像を繰り返す必要があるが、磁界の空間分布を検出できており可視化表示できることがわかる。

(2) 磁気光学効果の分光検出

複合材料の局所組織毎の磁気特性を取得するため、磁気光学効果スペクトルを短時間で検出する技術を確認した(成果論文②)。図6に磁気光学顕微鏡スペクトロメータ（偏光面変調法）の模式図を示す。ハロゲンランプから出射した白色光をファイバで導き、偏光子を通して集光して試料に入射させる。試料空間には、試料垂直方向に10 kOeの磁界を印加できるように電磁石を設置した。透過光は平行光化されたあと、ファラデーセルと検光子を通してファイバ結合され、分光検出系に導かれる。図7(a)にAuの二次元

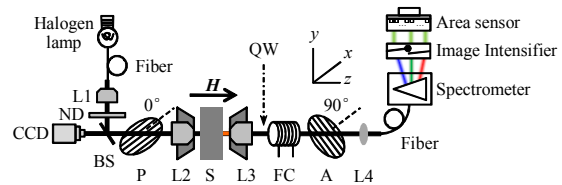


図6. 構築した磁気光学スペクトロメータの模式図。L1からL4は平行光，焦点化，ファイバ結合のためのレンズであり，NDは減光フィルタ，BSはビームスプリッターである。QWはアクロマティックλ/4板であり，楕円率スペクトルを測定する場合に挿入する。

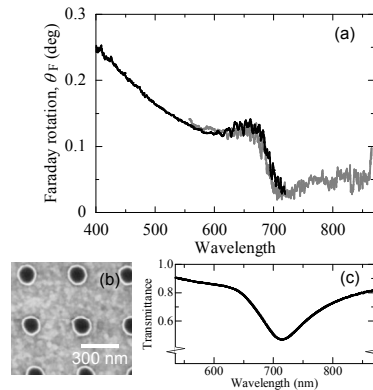


図7. (a) Auの二次元ナノディスク正方格子をパターンニングしたガラス基板の印加磁界10 kOeの際のファラデー回転角スペクトル。可視光用と近赤外光用との2種類のイメージングインテンスファイアを用いて実験したため、波長550~720 nmのスペクトルは重量している。(b) ナノディスク正方格子のSEM像。個々のナノディスクは148 nm径で高さは40 nm。正方格子の周期は250 nm。(c) 同試料の透過率スペクトル。

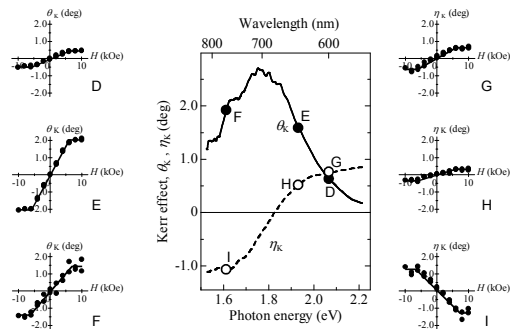


図8. 500°C熱処理後のCl_b型Pt_{77.8}Mn_{38.0}Sb_{34.2}薄膜のカー一回転角(θ_k)および楕円率(η_k)スペクトル。左右の磁化曲線は、1回の磁界掃引で得られた、波長600, 650, 780 nmの磁気光学ヒステリシスループ。

ナノディスク正方格子をパターンニングしたガラス基板の印加磁界10 kOeの際のファラデー回転角スペクトルを示す。波長に対して反比例的なスペクトル形状がガラス基板自体のファラデー回転スペクトルである。図7(b)には、ナノディスク正方格子のSEM像を示す。個々のナノディスクは148 nm径で高さを40 nmとし、格子周期を250 nmとした。波長680 nm付近にファラデー回転角の分散構造が観測される。図7(c)に示した透過率スペクトルの極小から、このナノディスク

の局在プラズモン共鳴波長が 680 nm 付近であると判断できる。したがって、磁気光学ファラデー回転角の分散構造は、プラズモン共鳴によりもたらされたものであることがわかる。

ここで提案した手法は、反射型光学系にもそのまま適用できる。一例として図 8 にハーフメタル強磁性として有名なハーフホイスラー $C1_b$ 型 PtMnSb 薄膜の磁気光学カーブスペクトルを、今回開発した装置で取得した結果を示す。測定結果によると、800 nm 付近で 2° を越える回転角の極大が観測されており、その波長付近で楕円率が 0 となっている。PtMnSb 材料は、近赤外光領域で誘電率の実数部分が零となる実効プラズマ端を有するために、反射型の磁気光学効果に分散構造が現れることが知られている。この結果は、今回開発した測定系の妥当性・信頼性を示すものである。また反射型光学系での測定の成功は、ケーラー照明に基づく偏光顕微鏡の光学系の結像光学系への取り付けが可能であることも示唆している。

以上の成果は、僅か数分程度の一回の磁界掃引だけで各波長の磁界ヒステリシスループを一気に取得できる点で計測時間を圧倒的に短縮できることから、これまでの磁気光学スペクトルの測定概念を覆す画期的なものである。本報告書ではファラデーセル変調法に基づく方法のみ説明したが、ファラデーセルを用いない偏光差分法でも同様に広波長範囲でスペクトルを取得できることを見出している (成果論文④)。

(3) 多機能分析磁気光学評価システムの構築

既得の「磁化ベクトル可視化」技術と、確立した「空間磁界の可視化」技術を組み合わせた顕微鏡光学系を確立すると共に、さらに検出光学系から分光検出器への光路分岐を設け、局所領域の磁気光学スペクトルも検出できるように全体のシステム化を行った。

以上、本科研費にて開発できたシステムは、磁気デバイスの迅速な開発ツールとして極めて有用である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 6 件)

① 齊藤 伸、鈴木 理明、杜 関祥、守 哲司、福田 浩章、高橋 研、「表面プラズモンを励起した強磁性金属/非磁性貴金属積層膜における縦カー効果の飽和および線型成分の増強」、日本磁気学会誌、37 巻、2013 年、352-357、査読有

DOI: 10.3379/msjmag.1310R003

② Shin Saito, Sasaki Tatsuaki, Sakae Meguro, Guang-Xiang Du and Migaku Takahashi, "Spectroscopic Detection of Magneto-Optical Hysteresis in a Single Magnetic Field Sweep by Faraday Cell Modulation.", IEEE Transactions on Magnetic, Vol. 49, 2013, 3537-3540, 査読有
DOI: 10.1109/TMAG.2013.2243714

③ Daichi Azuma, Ryusuke Hasegawa, Shin Saito, and Migaku Takahashi, "Effect of residual strain in Fe-based amorphous alloys on field

induced magnetic anisotropy and domain structure.", Journal of Applied Physics, Vol. 113, 2013, 17A339-1 - 17A339-3, 査読有

DOI: 10.1063/1.4799969

④ Guan Xiang Du, Shin Saito, and Migaku Takahashi, "Fast Magneto-optical Spectrometry by Spectrometer.", Review of Scientific Instruments, Vol. 83, 2012, 013103-1 - 013103-5, 査読有

DOI: 10.1063/1.3673638

⑤ Daichi Azuma, Ryusuke Hasegawa, Shin Saito, and Migaku Takahashi, "Domain structure and magnetization loss in a toroidal core based on an Fe-based amorphous alloy.", Journal of Applied Physics, Vol. 111, 2012, 07A302-1 - 07A302-3, 査読有

DOI: 10.1063/1.3670065

⑥ Guan Xiang Du, Shin Saito, and Migaku Takahashi, "Tailoring the Faraday Effect by Birefringence of Two Dimensional Plasmonic Nanorod Array.", Applied Physics Letters, Vol. 99, 2011, 191107-1 - 191107-3, 査読有

DOI: 10.1063/1.3660318

〔学会発表〕 (計 13 件)

① 目黒 栄、齊藤 伸、柳沢 栄二、赤羽 浩一、高橋 研、「Kerr 効果顕微鏡 ～微小偏光変化の高時間・空間分解能検出を求めて～ (招待講演)」、電気学会マグネティックス研究会、2013 年 12 月 11 日、信州大学、長野

② S. Meguro, K. Konishi, E. Yanagisawa, T. Ishibashi, S. Saito, and M. Takahashi, "Time Resolved Photographic Detection of Spatial Magnetic Field Distribution by Magneto-Optical Imaging Technique with Magnetic Transfer Film", 14th Magnetism and Optics Research International Symposium (MORIS 2013), 2013 年 12 月 3 日、大宮

③ 目黒 栄、柳沢 栄二、赤羽 浩一、齊藤伸、高橋 研、「高磁場 Kerr 効果顕微鏡における対物レンズのファラデー効果補正法」、第 37 回日本磁気学会学術講演会、2013 年 9 月 3 日、北海道大学、札幌

④ S. Saito, T. Sasaki, G. Du and M. Takahashi, "Spectrometric detection of magneto-optical hysteresis loop at single magnetic field sweep", 12th Joint MMM-INTERMAG Conference, 2013 年 1 月 18 日、アメリカ・シカゴ

⑤ D. Azuma, R. Hasegawa, S. Saito and M. Takahashi, "Field induced magnetic anisotropy in Fe-based amorphous alloys", 12th Joint MMM-INTERMAG Conference, 2013 年 1 月 17 日、アメリカ・シカゴ

⑥ S. Meguro, Y. Konishi, E. Yanagisawa, T. Ishibashi, S. Saito, and M. Takahashi, "Photographic Detection of Spatial Magnetic Field Distribution by Magneto-Optical Imaging Technique with Magnetic Transfer Film", 2nd International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies, 2012 年 10 月 2 日、奈良

- ⑦ Guan Xiang Du, Tatsuaki Sasaki, Shin Saito, and Migaku Takahashi, “Parallel measurements of magnetic hysteresis loop and magneto-optical effect by spectrometric detection”, 2nd International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies, 2012年10月2日、奈良
- ⑧ 杜 関祥、佐々木 龍昭、齊藤 伸、高橋 研、「磁気光学ヒステリシスループの分光検出法」、平成24年電気学会基礎・材料・共通部門大会、2012年9月21日、秋田
- ⑨ 目黒 栄、小西 泰司、柳沢 栄二、石橋隆幸、齊藤 伸、高橋 研、「磁気転写膜と広視野磁区観察装置を用いた空間磁場の一括観察法」、平成24年電気学会基礎・材料・共通部門大会、2012年9月21日、秋田
- ⑩ 齊藤 伸、鈴木 理明、杜 関祥、高橋 研、「Au膜への表面プラズモン励起による増強型磁気光学効果をプローブとした空間磁場の走査型検出」、平成24年電気学会基礎・材料・共通部門大会、2012年9月21日、秋田
- ⑪ Daichi Azuma, Ryusuke Hasegawa, Shin Saito, and Migaku Takahashi, “Domain structure and magnetization loss in a toroidal core based on an Fe-based amorphous alloy”, 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2011年11月1日、アメリカ・スコッツデール
- ⑫ Guan-Xiang Du, Shin Saito, and Migaku Takahashi, “Faraday effect in plasmonic nanorod measured by laser diode”, 第35回日本磁気学会学術講演会, 2011年9月29日、新潟
- ⑬ 目黒 栄、齊藤 伸、赤羽 浩一、高橋 研、「3次元局所磁化方向の検出が可能な磁区観察装置の開発」、第35回日本磁気学会学術講演会, 2011年9月27日、新潟

[その他]

ホームページ等

<http://www.takahashi.ecei.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齊藤 伸 (SAITO SHIN)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：50344700

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

目黒 栄 (MEGURO SAKAE)

ネオアーク株式会社・部長代理

東 大地 (AZUMA DAICHI)

日立金属株式会社・技師