

# DPC STEM 法を用いた永久磁石中の磁壁幅直接計測

村上善樹<sup>1</sup>、関岳人<sup>1,2</sup>、幾原雄一<sup>1,3</sup>、柴田直哉<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup> 東京大学大学院工学系研究科総合研究機構, <sup>2</sup> JST さきがけ, <sup>3</sup> ファインセラミックスセンター ナノ構造研究所)

Direct measurement of magnetic domain wall width in permanent magnets by DPC STEM

Y. O. Murakami, T. Seki, Y. Ikuhara, N. Shibata

<sup>1</sup>Institute of Engineering Innovation, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo, Japan, <sup>2</sup>JST presto, <sup>3</sup>Nanostructures Research Laboratory, Japan Fine Ceramics Center, Atsuta-ku, Nagoya, Japan

**はじめに**：走査透過型電子顕微鏡法 (Scanning Transmission

Electron Microscopy: STEM) は材料中の構造・組成を高い空間分解能で観察できる手法である。Fig. 1 に示す分割型検出器を用いて透過電子線のローレンツ偏向を検出し、試料中の磁場分布を実空間で可視化する微分位相コントラスト (differential phase contrast:

DPC) 法[1]は、STEMによる磁場観察手法であり、近年開発された無磁場環境原子分解能 STEM[2]と組み合わせることで原子磁場の直接観察に成功[3]するなど、高い空間分解能を持つ。また、従来 DPC 像には電子線回折に起因する電磁場以外のコントラストが重畳する問題があったが、電子線をわずかに傾斜させ、さまざまな回折条件の DPC 像を平均化することで精度の高い電磁場計測が可能となった[4,5]。ナノスケールの磁壁幅は局所領域の交換剛性と結晶磁気異方性に依存することで知られる。本研究[6]では、Nd-Fe-B 系およびフェライト系の永久磁石の各種試料において DPC 法を用いた磁壁幅の直接計測を行った。

**実験方法**：Nd-Fe-B 系異方性磁石に La を浸透させ主相結晶粒内に Nd の濃度勾配を施した La 置換型 Nd-Fe-B 系試料と、La 置換のない従来型 Nd-Fe-B 系試料、また Sr 系および Ca-La-Co 系フェライト磁石試料を用意し、収束イオンビーム装置等を用いて TEM 試料を作製した。La 置換型 Nd-Fe-B 系試料では、低倍率の DPC 観察と EELS 観察により同一結晶粒内の Nd-rich 領域と Nd-poor 領域に位置する 1 本の磁壁を特定し、それぞれの領域で高倍率 DPC 像を取得した。従来型 Nd-Fe-B 系試料およびフェライト系試料でも同様に高倍率 DPC 像を取得した。

**実験結果**：Fig.2 に従来型 Nd-Fe-B 系試料で取得した高倍率 DPC 像を示す。4 種類の試料の組成の異なる計 5 つの領域で同様の像を取得した。それぞれ磁壁に沿った平均化により得たプロファイルに対して磁壁の解析解  $y = \tanh(x/d)$  でフィッティングを行い、磁壁幅  $w = \pi d$  を計測した。回折コントラストの影響やフィッティング領域の影響も調査し誤差を算出した。従来型 Nd-Fe-B 系試料での測定値は  $6.7 \pm 0.8$  nm であり、原子論的スピンモデルのシミュレーションによる報告値[7]と良い一致を示した。Nd-Fe-B 系と Ferrite 系の差に加え、Nd 濃度や Co 濃度による磁壁幅の変化をも直接測定することに成功した。詳細は講演にて述べる。

**参考文献**：1) N. Shibata *et al.*, Acc. Chem. Res., (2017) 5) S. Toyama *et al.*, Ultramicroscopy, (2022)  
2) N. Shibata *et al.*, Nat. Commun. (2019) 6) Y. O. Murakami *et al.*, Ultramicroscopy, submitted.  
3) Y. Kohno *et al.*, Nature, (2022). 7) M. Nishino *et al.*, Physical Review B, (2017)  
4) Y. O. Murakami *et al.*, Microscopy, (2020)

**謝辞**：本研究に用いた Nd-Fe-B 系磁石は(株)トヨタ自動車の木下昭人様および庄司哲也様から、フェライト系磁石は(株)プロテリアルの穴井克樹様、小林義徳様および川田常宏様からご提供いただきました。

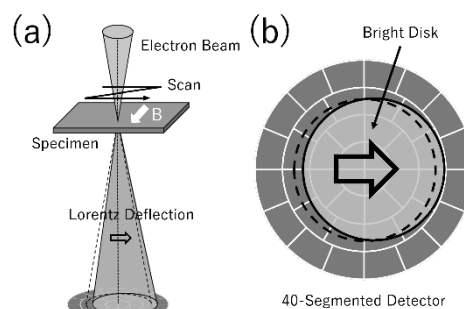


Fig. 1 (a) DPC STEM の概略図. (b) 40 分割の分割型検出器と ADF 検出器の概略図. 中心の白いディスクは透過電子ディスクを表す.

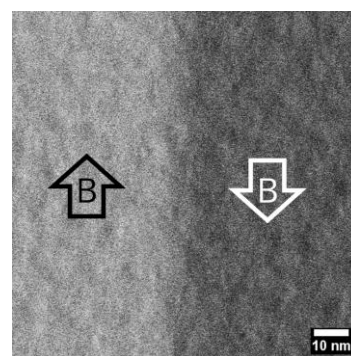


Fig. 2 Sr フェライト試料で取得した DPC 像. 矢印は磁場の方向を示す.

## 直流磁場計測・交番磁気力顕微鏡の開発： 2 重層空芯コイルを用いた磁場勾配と磁場の単独検出

江原 廉、園部 博、松村 透、齊藤 準  
(秋田大理工)

Development of alternating magnetic force microscopy for DC magnetic field imaging:  
Independent detection of magnetic field gradient and magnetic field by using double air core coils

R. Ehara, H. Sonobe, T. Matsumura, H. Saito  
(Akita Univ.)

**はじめに** 磁気力顕微鏡は磁場勾配を検出しているため、空間分解能は優れるものの測定量の定量性に劣ることが課題であった。我々は試料表面の磁気力を高空間分解能で単独検出できる交番磁気力顕微鏡 (Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM) において、超常磁性探針 (探針磁化が磁場印加により印加磁場強度に比例して磁場方向に発生) を観察試料面に垂直な交流磁場で励磁することで、試料面に垂直な磁場成分のみの検出を実現しており、さらに探針の励磁に磁場の空間分布が既知の空芯コイルを用いることで、磁石試料の直流磁場勾配  $\partial H_z^{dc} / \partial z$  と直流磁場  $H_z^{dc}$  の分離抽出法を提案している。本報告では、2つの空芯コイルから構成される複合コイルを用いて、コイルの交流電流を同相および逆相に流すことで、 $\partial H_z^{dc} / \partial z$  と  $H_z^{dc}$  の単独検出を試みた。

**実験方法** Fig.1 (a)~(f)に複合コイル中心部の交流磁場の模式図および交流磁場  $H_z^{ac}$  と交流磁場勾配  $\partial H_z^{ac} / \partial z$  の空間分布を示す。図(a),(b),(c)は、順方向接続時、図(d),(e),(f)は逆方向接続時の場合である。探針に試料面に垂直方向の交流磁場  $H_z^{ac} \cos(\omega t)$  を印加すると、探針にかかる磁場  $\mathbf{H}$  は、試料から発生する直流磁場を  $\mathbf{H}^{dc}$  とすると、 $\mathbf{H} = \mathbf{H}^{dc} + H_z^{ac} \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$  となり、探針磁化  $\mathbf{m}^{tip}$  が磁場に比例する ( $\mathbf{m}^{tip} = \chi \mathbf{H}$ ) ので、A-MFM が検出する磁気力勾配は超常磁性探針を超常磁性粒子の集合とすると磁気力勾配

$$F_z' = \frac{\partial F_z}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left( -\frac{\partial U}{\partial z} \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left( -\frac{\partial}{\partial z} \left( \sum_i (-\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{H}_i) \right) \right) \equiv \frac{\partial}{\partial z} \left( -\frac{\partial}{\partial z} \left( \int -\mathbf{m} \cdot \mathbf{H} dz \right) \right) = \frac{\partial}{\partial z} (\mathbf{m} \cdot \mathbf{H})$$

の  $\omega$  成分は、

$$F_z'(\omega t) = 2\chi^{tip} \cos(\omega t) \frac{\partial}{\partial z} \int_{V_{tip}} \left( H_z^{ac} \frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z} + \frac{\partial H_z^{ac}}{\partial z} H_z^{dc} \right) dV = 2\chi^{tip} \cos(\omega t) \left( H_z^{ac} \frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z} + \frac{\partial H_z^{ac}}{\partial z} H_z^{dc} \right)$$

となる。

探針を複合コイル中心に設置した場合、順方向接続時には、探針にかかる  $H_z^{ac}$  は最大となり  $\partial H_z^{dc} / \partial z$  はゼロになるので、 $F_z' = 2\chi(H_z^{ac} (\partial H_z^{dc} / \partial z)) \cos(\omega t)$  が測定され、 $\partial H_z^{dc} / \partial z$  の単独検出が可能になる。一方、逆方向接続の場合、 $H_z^{ac}$  はゼロになり、 $\partial H_z^{dc} / \partial z$  が最大となり、

$F_z'(\omega t) = 2\chi((\partial H_z^{ac} / \partial z) H_z^{dc}) \cos(\omega t)$  が測定され、 $H_z^{dc}$  の単独検出が可能になる。観察試料には、NdFeB 磁石を用い、超常磁性探針は Si 探針母材に Co-GdO<sub>x</sub> 超常磁性薄膜を 100 nm 成膜したものを用いた。

**実験結果** Fig.1(g)は順方向接続時の A-MFM 像 ( $\partial H_z^{dc} / \partial z$  像) であり、Fig.1(h)は Fig.1(g)を積分変換処理<sup>1)</sup>した像 ( $\int (\partial H_z^{dc} / \partial z) dz = H_z^{dc}$  像) である。Fig.1(i)は逆方向接続時の A-MFM 像 ( $H_z^{dc}$  像) である。図(i)は信号強度が弱いものの、図(g)と磁場分布の特徴が一致していることがわかる。以上より、直流磁場勾配像  $\partial H_z^{dc} / \partial z$  と直流磁場像  $H_z^{dc}$  の単独検出をほぼ実現できたと考えている。今後は、 $H_z^{dc}$  の測定精度の向上や、外部からの直流磁場印加による A-MFM 信号の変化を用いた  $H_z^{dc}$  値の校正を検討する予定である。

1) 日本磁気学会 磁気イメージングハンドブック 共立出版 2010年 p 95-p128

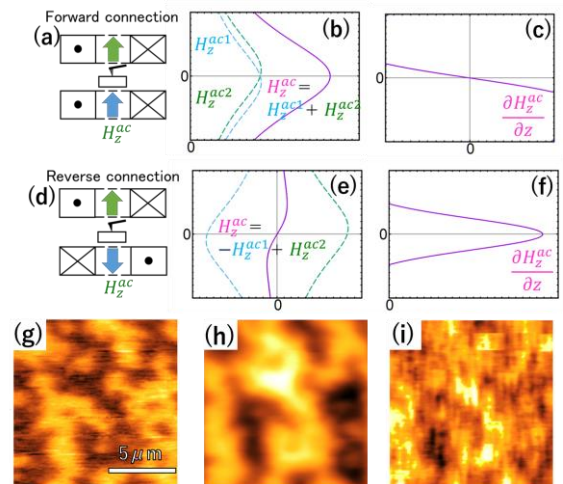


Fig 1 Magnetic field and magnetic field gradient distributions of a two-layer air-core coil [(a)~(f)] and A-MFM images of (g)  $\partial H_z^{dc} / \partial z$ , (h)  $\int (\partial H_z^{dc} / \partial z) dz$ , (i)  $H_z^{dc}$ .

# 交番磁気力顕微鏡によるソフト磁性薄膜の磁壁移動イメージング： 磁場方向を制御可能な複合型空芯コイルの試作

鈴木 魁智、M. Makarova、園部 博、松村 透、齊藤 準  
(秋田大理工)

Domain wall displacement imaging of soft magnetic film by alternating magnetic force microscopy:  
Fabrication of composited air core coils for controlling magnetic field direction

K. Suzuki, M. Makarova, H. Sonobe, T. Matsumura, H. Saito  
(Akita Univ.)

## はじめに

モータやトランスなどの鉄心に使用するソフト磁性材料の性能向上には、磁区構造を交流磁場下で観察し磁気特性との相関を知ることが重要である。しかしながら磁気力顕微鏡(MFM)観察では、強磁性探針を用いた場合、静磁場観察においても探針からの漏洩磁場により容易に試料の磁区構造が変化する問題があった。一方、我々はこれまで、試料表面近傍で交流磁場を検出可能な交番磁気力顕微鏡(Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM)において、残留磁場がゼロの超常磁性探針を用い、交流磁場を印加することでパーマロイ・パターンド薄膜の磁壁構造や磁壁移動のイメージングに成功している<sup>1)</sup>。Fig.1(a)、(b)に交流磁場を試料面に垂直および垂直方向から $5^\circ$ 程度傾けて印加した場合のA-MFM像を一例として示す。図(a)では静止したネール磁壁が観察でき、図(b)では、左右に移動する磁壁の移動範囲が観察できる。交流磁場方向の調整はこれまで、交流磁場源としてフェライトコアを用い、3点支持台によりフェライトコアの傾きを変化させて行っていた。このため磁場方向の調整が容易でなく、磁場方向を適宜変化させて観察することは困難であった。

本研究では、交流磁場源として空芯コイルを用い、空芯コイルを組み合わせることで、交流磁場方向を制御することを試みた。

## 磁壁移動イメージング用交流磁場コイルの試作

Fig.2(a),(b)に2つのコイルから構成される複合型空芯コイルとその発生磁場の模式図を示す。磁場方向は2つのコイルの磁場の重ね合わせで決定される。図(b)よりコイルに流す電流の大きさと位相差を制御することで、磁場方向が変化することがわかる。ここで観察試料面に垂直方向の磁場成分は超常磁性探針の磁化を周期的に変化させることに用いられ、観察試料面に平行方向の磁場成分は磁壁を周期的に移動させることに用いられる。周期的に変化する探針磁化に、移動する磁壁から周期的に磁場が印加されることにより、A-MFM信号が発生し磁壁移動が画像化される<sup>1)</sup>。この複合コイルを2組用い、個々の面内磁場成分が直交するように配置し、各組のコイルの電流の大きさと位相差を調整することで、観察試料面に印加する面内磁場方向を任意に変化させることが可能になる。学会では、試作した複合型空芯コイルを用いた磁壁移動イメージングの観察結果について報告する。

## 参考文献

1) 成田, 齊藤 他, 第44回日本磁気学会学術講演概要集, 15pD-1, 124 (2020)

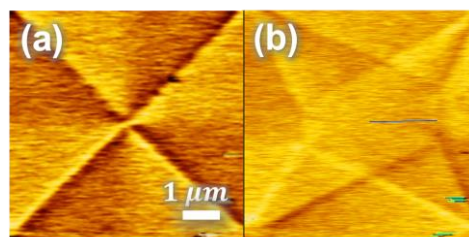


Fig.1 A-MFM images with perpendicular AC magnetic field [(a)] and inclined AC magnetic field [(b)] of permalloy patterned film.

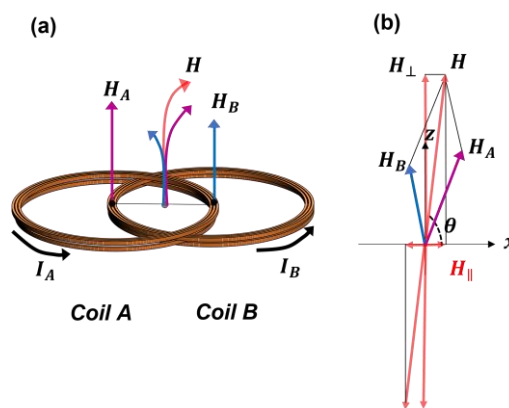


Fig.2 Schematic diagrams of composited air core coil [(a)] and generating resultant AC magnetic field [(b)]

# 交番磁気力顕微鏡を用いた高周波磁場イメージングに向けた 導波管・進行波アンテナを用いた強磁性共鳴検出方法の検討

梅田 尚優希、林 慧太、M. Makarova、園部 博、松村 透、齊藤 準  
(秋田大理工)

Detection method of ferromagnetic resonance by using traveling-wave waveguide antenna  
for alternating magnetic force microscopy for high-frequency magnetic field imaging

N. Umeda, K. Hayashi, M. Makarova, H. Sonobe, T. Matsumura, H. Saito  
(Akita Univ.)

**はじめに** 近年、磁気記録におけるマイクロ波アシスト方式や高周波無線通信技術の進展等により、マイクロ波領域における磁性材料の微視的な強磁性共鳴現象や電磁波吸収特性等の理解が重要になっている。このため我々は、これまでに開発した交番磁気力顕微鏡（磁気力を試料表面で単独検出可能であり、高空間分解能を有する）に、新たに開発した高周波磁場照射源（導波管・進行波アンテナ）を付加することで高周波磁場イメージングへの応用を進めている。本研究では強磁性共鳴イメージングに先立ち、観察試料の強磁性共鳴条件を探るために、開発した導波管・進行波アンテナを用いて、強磁性共鳴検出方法を検討した結果を報告する。

**実験方法および結果** 強磁性体試料の強磁性共鳴は試料のマイクロ波吸収量の変化から調べた。Fig. 1 に強磁性共鳴検出に使用した実験系の模式図を示す。マイクロ波は方向性結合器を介して同軸・導波管変換器により導波管に導入した。試料は導波管の開放端に導波管と電氣的に接触しない状態で設置した。試料には導波管からのマイクロ波磁場と直交方向から直流磁場を電磁石を用いて印加した。導波管は TE<sub>10</sub> モードで使用した。

最初に、試料がない状態で大気中にマイクロ波が全て放射するように、導波管内でインピーダンス整合を行った。その際には、方向性結合器の反射電力をモニターし、反射電力がほぼゼロになるように、導体針を導波管広管壁の中央に設けたスリットに接触させながら挿入位置と挿入深さを調整した。

次に試料を導波管開放端に設置して、反射電力をモニターし、マイクロ波がほとんど試料を透過する場合には、試料背面に銅板を設置し、試料を透過してきたマイクロ波を反射させ、方向性結合器の反射電力を測定し、銅板のみの反射電力と比較することにより試料のマイクロ波吸収量を評価した。その際には、試料に印加する直流磁場値を変化させた。

Fig. 2(a), (b) に測定試料を市販のソフトフェライト板 (2cm 角×1mm 厚) とした場合に、マイクロ波磁場周波数を 24 GHz に固定して、(a) では直流磁場をかけず、(b) では直流磁場を 5.80 kOe 印加した場合の反射電力の周波数スペクトルを示す。図中央に 24 GHz の反射電力信号が見られ、図(b) では反射電力信号が最も減少しており、強磁性共鳴が推察される。

Fig. 3 に、反射電力が極小となった条件でのマイクロ波磁場周波数と直流磁場の関係図を示す。Kittel の扁平な回転楕円体の長手方向に直流磁場を印加した際の強磁性共鳴式  $\omega_0 = \gamma \sqrt{H(H + 4\pi(N_z - N_x)M_s)}$  を用いて、計算した近似曲線も合わせて示す。図より反射電力が極小となる点は強磁性共鳴で説明できることがわかる。学会では、これらの詳細およびハードフェライト試料等の種々の試料についての測定結果について報告する予定である。

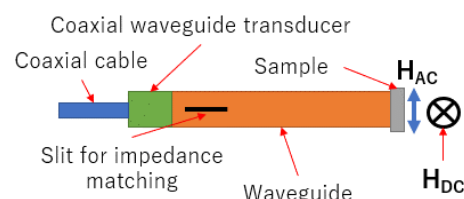


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup for detecting ferromagnetic resonance.

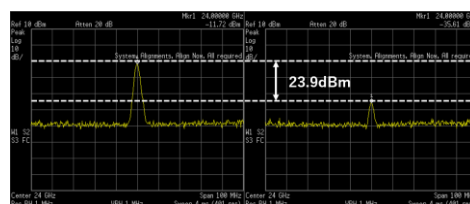


Fig. 2 Frequency spectra of (a) off and (b) on ferromagnetic resonance.

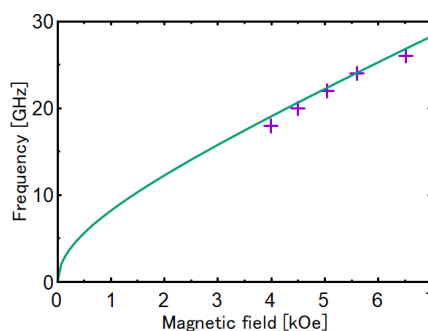


Fig. 3 Maximum microwave absorption conditions.

## 交番磁気力顕微鏡を用いた高周波磁場イメージングに向けた 12-40 GHz 帯導波管・進行波アンテナの開発

林 慧太、梅田 尚優希、M. Makarova、園部 博、松村 透、齊藤 準  
(秋田大理工)

Development of 12-40 GHz traveling-wave waveguide antennas for alternating magnetic force microscopy  
for high-frequency magnetic field imaging

K. Hayashi, N. Umeda, M. Makarova, H. Sonobe, T. Matsumura, H. Saito  
(Akita Univ.)

**はじめに** 近年、磁気記録におけるマイクロ波アシスト方式や高周波無線通信技術の進展等により、マイクロ波領域における磁性材料の微視的な強磁性共鳴現象や電磁波吸収特性等の理解が重要になっている。このため我々は、これまでに開発した交番磁気力顕微鏡(Alternating magnetic force microscopy; A-MFM)用に高周波数帯まで使用できるマイクロ波磁場照射源の開発を進めている。ここで A-MFM は、磁気力を試料表面で単独検出可能であり、高空間分解能を有する特徴がある。本報告では最大周波数が 40 GHz の WR-28 規格 (26.4 ~ 40 GHz) の方形導波管を含む導波管・進行波アンテナのマイクロ波放射性能と、導波管アンテナの高周波磁場検出用探針材料 (Co-GdO<sub>x</sub> 超常磁性薄膜) の磁場応答性評価への適用結果について述べる。

**結果** 試作した導波管アンテナを交番磁気力顕微鏡に組み込む際には、導波管アンテナへのマイクロ波電力の供給は、マイクロ波電源から方向性結合器を介して行う。導波管アンテナでは導波管の開放端からマイクロ波を試料に照射するが、導波管にはマイクロ波を効率よく放射できるようにインピーダンス整合機構が設けられている。インピーダンス整合の際には、方向性結合器の反射電力をモニターし、反射電力がほぼゼロになるように、導体針を導波管広管壁の中央に設けたスリットに接触させながら挿入位置と挿入深さを調整した。

Fig.1 に WR-62 規格 (11.9~18 GHz) および WR-42 規格 (17.6~26.7 GHz) の方形導波管で構成した導波管アンテナの大気開放およびガラス基板に対するインピーダンス整合後の反射電力の周波数依存性を示す。同図には方向性結合器で測定した導波管アンテナへの投入電力も合わせて示した。図に見るように大気開放時以外に、インピーダンス整合を行わないとマイクロ波が反射するガラス基板においても、インピーダンス整合によりマイクロ波を無反射で放射できることがわかった。

Fig.2 に WR-42 規格 (17.6~26.7 GHz) および WR-28 規格 (26.4~40 GHz) の方形導波管で構成した導波管アンテナで測定した Co-GdO<sub>x</sub> 超常磁性薄膜 (超常磁性薄膜の背面にマイクロ波反射用の銅板を配置している) の反射電力の周波数依存性を示す。超常磁性薄膜の膜厚は 100nm で基板はガラスである。反射電力は銅板のみの反射電力を 100%として規格化した。図に見るように、超常磁性薄膜においては、30 GHz を超えても、銅板のみの場合と比較して反射電力が 6 割程度であり、4 割程度のマイクロ波が吸収されていることがわかり磁場応答性が確認できた。

現在、導波管アンテナの A-MFM への組み込みを進めており、その詳細は学会で報告する。

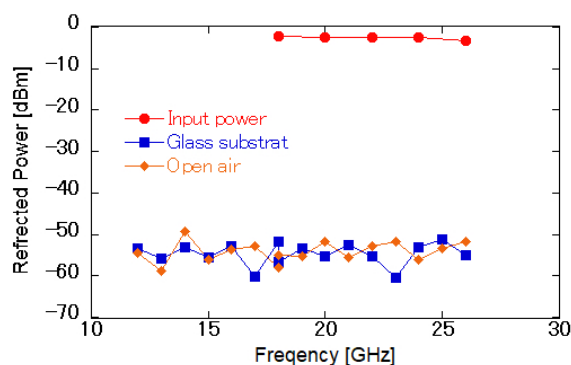


Fig. 1 Frequency dependence of reflection power of glass substrate and open air on fabricated waveguide antenna after impedance

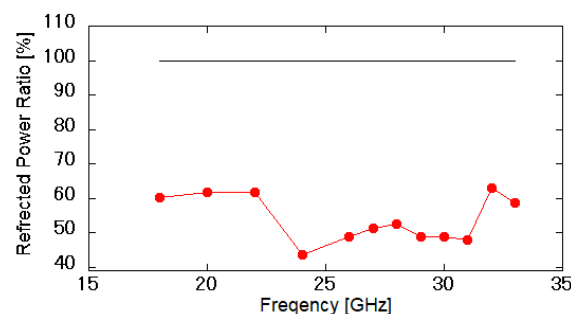


Fig. 2 Frequency dependence of reflection power of Co-GdO<sub>x</sub> superparamagnetic film with backside Cu plate.