

ローレンツ顕微鏡

Lorentz Microscope

進藤 大輔, 赤瀬 善太郎

Daisuke Shindo and Zentaro Akase

東北大学多元物質科学研究所

要旨 磁性体の磁区観察に用いられるローレンツ顕微鏡の原理とその応用について記した。まず、試料の磁区構造に影響を与えない小さな磁場で観察を行う対物レンズ（ローレンツレンズと呼ばれる）の機構について説明した。次に、ローレンツ顕微鏡法と呼ばれる磁区観察法について解説した。汎用のディフォーカス法その他インフォーカス法を説明するとともに、強度輸送方程式を用いた位相計測法と走査ローレンツ顕微鏡法についても概説した。さらに、磁性材料の特性を理解する上で重要な磁化過程を明らかにするための各種磁場印加システムについても紹介した。永久磁石を用いた磁性針をピエゾ駆動ホルダに装着することにより、局在した強い磁場を試料に印加でき、永久磁石の逆磁区発生過程を追跡できることを示した。また、開発中の磁場印加と偏向システムを同期させた交流磁場印加システムの説明を行い、電磁鋼板中の析出物と磁壁の相互作用についての観察結果も紹介した。

キーワード：ローレンツ顕微鏡, ローレンツレンズ, 磁場印加システム, 磁壁, 磁化過程

1. はじめに

汎用の透過電子顕微鏡に用いられている電子レンズは、電磁石からなり、ローレンツ力を利用して入射電子を偏向させ、像の拡大機能をもたせている。試料位置での対物レンズによる磁場は2T（テスラ）にもおよび、永久磁石などのいわゆるハード磁性材料でさえ、この強い磁場の影響を受け、その磁区構造は壊されてしまう。こうした電子レンズの抱える磁区観察の問題に対して、対物レンズの磁場を低く抑え、正確な磁区構造を観察するために開発された電子顕微鏡が、本稿で述べるローレンツ顕微鏡である。

本稿では、ローレンツ顕微鏡に使用される対物レンズ（ローレンツレンズと呼ばれる）の機構について説明するとともに、ローレンツ顕微鏡法と呼ばれる磁区の観察様式について解説する。さらに、磁性材料の特性を理解する上で重要な磁化過程を明らかにするための各種磁場印加システムを紹介し、その磁区観察への応用例を記す。

2. ローレンツレンズ

磁区観察を行う際には、試料位置での磁場を弱くする必要がある。磁場を弱くする最も簡便な方法は対物レンズのスイッチを切り、消磁処理を行うことである。また、対物レンズを動作させたまま、強い磁場の影響が無いところまで試料を移動させる場合もある。しかしながらこれらの場合には、顕微鏡の分解能を主に決定する対物レンズを切る、あるいは

レンズから離れた位置に試料を移動させるため、高い分解能での像観察は期待できない。そこで詳細な磁区構造を観察するために、対物レンズに特殊な磁場シールド機能を持たせ、試料位置での磁場を低く抑える一方、試料位置近傍に強い磁場を発生させる、いわゆるローレンツレンズが開発されてきている。図1は、代表的な2種類のローレンツレンズの例であり、(a)では試料下部の磁極間 (S_1) に磁束が集中するようになっている。ここで、試料周りの空間は磁極で囲まれているので、試料にかかる磁極からの漏洩磁場は最小に抑えられている^{1,2)}。一方、(b)では、3つの磁極から構成されている。試料は中央の磁極内に位置して磁場からシールドされ、磁束は試料の上 (S_2) と下 (S_3) の磁極間に集中している³⁾。磁極間のギャップ数の違いから前者はシングルギャップ、後者はダブルギャップのローレンツレンズと呼ばれている。図2の光線図に太い実線 (B_p) で示す様に、通常の電子顕微鏡観察 (a: 透過電子顕微鏡像, b: 走査型透過電子顕微鏡像) では、試料位置に対物レンズの磁束が集中しているが、ロー

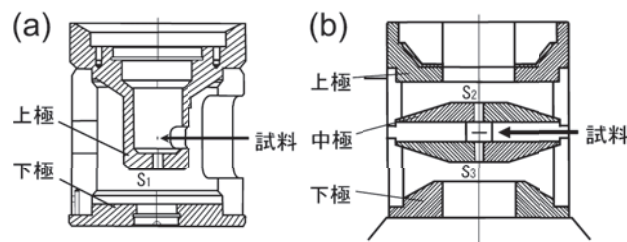


図1 ローレンツレンズの模式図。(a) シングルギャップタイプ。(b) ダブルギャップタイプ。ギャップの位置が S_1 , S_2 , S_3 で示してある。

¹ 〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平2-1-1

TEL & FAX: 022-217-5170

2008年11月14日受付

レンツレンズ (c, d) では、試料位置で磁場は低く抑えられている⁴⁾。(c) のシングルギャップのローレンツレンズは、後述の汎用のローレンツ顕微鏡法に用いられ、ダブルギャップのローレンツレンズ (d) は、走査ローレンツ顕微鏡法に用いられている。

3. 磁区観察様式

3.1 汎用のローレンツ顕微鏡法

ローレンツレンズ内では、磁場は低く抑えられおり、磁性体試料の磁化の分布が電子レンズによって影響を受けることはない。こうした条件下で、磁性体内の磁化分布の情報を得るには、入射電子の試料内での磁場によるローレンツ力による偏向を利用する。ローレンツ力による入射電子の偏向を利用した観察様式は、ローレンツ顕微鏡法と呼ばれ、最も簡便な観察様式として、対物レンズのフォーカスをずらして観察するデフォーカス法 (フレネル法とも呼ばれる) と正焦点位置で観察するインフォーカス法 (フーコー法とも呼ばれる) の二つがある^{5,6)}。

3.1.1 デフォーカス法

入射電子は、試料内で磁場に伴うローレンツ力によって偏

向を受ける。この時電子が受ける力は、よく知られたフレミング左手の法則、つまり左手の親指が力 (F)、人差し指が磁場 (B) そして中指が電流の方向 (I) によって示され、その大きさは、電子の速度を v 、素電荷を e とすると、磁束密度 B を用いて、

$$F = -e(v \times B) \quad (1)$$

と与えられる。この時、電子の運動方程式は、

$$\frac{dP_x}{dt} = m \frac{d^2x}{dt^2} = evI_y \quad (2)$$

で表される。ここで、 m は速度 v での電子の質量であり、 I_y は y 方向の磁化を示す。したがって、厚さ t_z の試料による偏向角 θ_L は

$$\theta_L = \frac{dx}{dz} = \frac{dx}{dt} \frac{dt}{dz} = \frac{et_z}{mv} I_y \quad (3)$$

と与えられる。デフォーカス法では、比較的大きくフォーカスをずらした状態で磁性材料を観察する (図 3 (a))。したがって、例えばオーバーフォーカス (過焦点: レンズ作用を強くする場合) 側では、偏向を受けた電子が強め合ったりまた弱め合ったりして像コントラストを形成する (図 3 (b))。これに対して、アンダーフォーカス (不足焦点: レンズ作用を弱くする場合) 側では、像コントラストの反転が生じる (図 3 (c))。電子の偏向により、磁壁の像強度が高くなる場合を収束像、また像強度が低くなる場合を発散像と呼んでいる。

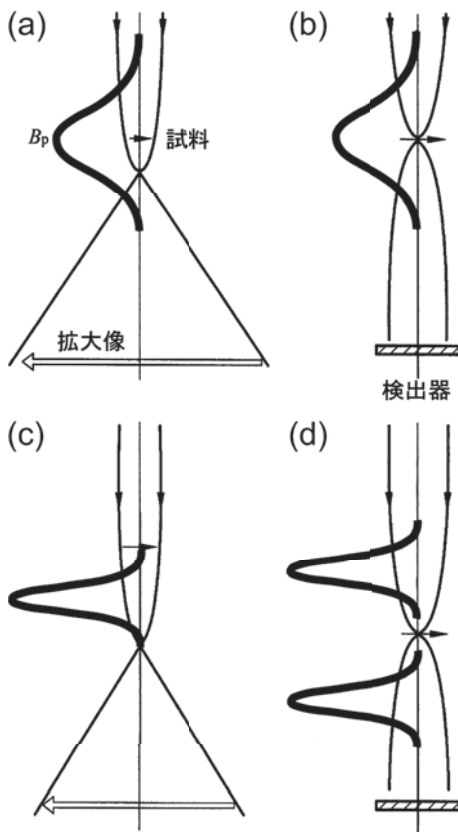


図2 各種対物レンズにおける光線図と磁束分布 (B_p : 太線). (a) 通常の対物レンズを用いた TEM 観察. (b) 通常の対物レンズを用いた STEM 観察. (c) シングルギャップタイプローレンツレンズを用いた TEM 観察. (d) ダブルギャップタイプローレンツレンズを用いた STEM 観察.

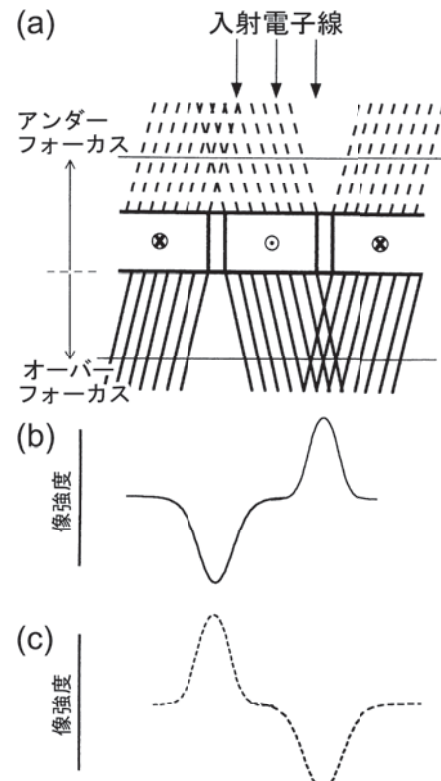


図3 デフォーカス法の原理 (a) とオーバーフォーカス (b)、アンダーフォーカス (c) での像強度.

図4 (a) には、Sm-Co系永久磁石のデフォーカス法で得られたローレンツ顕微鏡像を示す⁷⁾。c軸方向に沿って白と黒のジグザグの線が認められるが、これが磁壁の位置に対応する。デフォーカス量に対する磁壁のコントラストの幅を測定し、外挿法により正焦点位置での磁壁の幅を見積もることができる⁸⁾。

なお、この手法は磁性体の磁区構造観察だけでなく、超伝導体中の磁束量子の観察にも有効である。外村らの研究グループによって磁束量子の観察にデフォーカス法が適用され、世界で初めて磁束量子の動く様子が観察されるなど、大きな成果が得られている⁹⁾。

3.1.2 インフォーカス法

図5 には、インフォーカス法によるローレンツ顕微鏡像の観察様式が模式的に示してある。式(1)のローレンツ力によって、式(3)の偏向を受けた電子は、回折パターン上に僅かに分裂した透過ビームや回折斑点を形成する。これらの分裂したビームを、正焦点(インフォーカス)でいっしょに結像に用いても何ら磁区に関する情報は得られない(図5(a))が、(b)や(c)のように、分裂したビームの一方のみを結像に用いれば、磁区が識別できることになる。図4(b)には、インフォーカス法で観察したSm-Co系磁石のローレンツ顕微鏡像が示されている。デフォーカス法に比べ、より高倍率での観察ができ、図4(b)では、Sm₂Co₁₇相とSmCo₅相の微細なセル組織も観察されており、磁壁のジグザグな形状がこのSmCo₅相に沿って存在していることが明らかとなっている。

3.2 強度輸送方程式を用いた位相計測法¹⁰⁾

上述のデフォーカス法では、磁壁の位置が可視化されるだけであったが、強度輸送方程式(Transport of Intensity Equation, TIE)を用いると、デフォーカス量を変化させながら撮影した複数の電子顕微鏡像の強度分布から位相情報を

導き出すことができる¹¹⁾。強度輸送方程式は小角散乱を仮定した真空中でのシュレディンガー方程式の虚数部分で与えられ、次式となる。

$$\frac{2\pi}{\lambda} \frac{\partial}{\partial z} I(xyz) = -\nabla_{xy} \cdot (I(xyz) \nabla_{xy} \phi(xyz)) \quad (4)$$

ここでλは入射電子線の波長、Iは電子線強度、∇_{xy}はxy平面でのベクトル微分演算子、φは位相である。強度輸送方程式の数値解法としてPaganinとNugentは上式から2つのポアソン方程式を導いて、それをフーリエ変換を用いて解く方法を提案している¹²⁾。解析に必要な実験データは「像強度の伝播方向の微分値」であり、これは、フォーカスをずらして撮影した複数の観察強度の差分で近似する。具体的には3枚の対称的なローレンツ顕微鏡像があれば計算できる。ただし、デフォーカス量は入射電子線の波長に反比例し、分解能の二乗に比例した「許容伝播距離」以下でないと誤差が大きくなる。強度輸送方程式による位相計測法は強度分布変化の低周波ノイズに弱い面もあるが、特別な付加装置を必要とせず、観察領域の制限もないため、実際の解析の現場において有用な場合がある。

3.3 走査ローレンツ顕微鏡法

本観察手法は走査型透過電子顕微鏡を基に、局所領域での磁気計測を目的として、グラスゴー大学のChapmanらにより開発されたものである¹³⁾。この手法で用いる走査型透過電子顕微鏡の装置は主に①電子線源、②電子線走査部、③コンデンサーレンズ(対物レンズ)、④十字に分割された四分分割検出器で構成されている。まず、磁化がないときの電子線の中心が、回折面(後焦平面に対応)上の四分分割検出器の中心に当たるようにし、四つの検出器に等しく入射するように調整しておく。この状態で磁性体試料を走査すれば、ローレンツ力により電子線が偏向し、検出器上の電子線の位置がずれて、検出器間の信号強度に差が生じる。この差信号を総和信号で割ることにより磁化情報を抽出することが出来る。この手法は走査型透過電子顕微鏡像を見て組織情報を観察しながら、差信号により磁化情報も同時に計測できるという特徴がある。

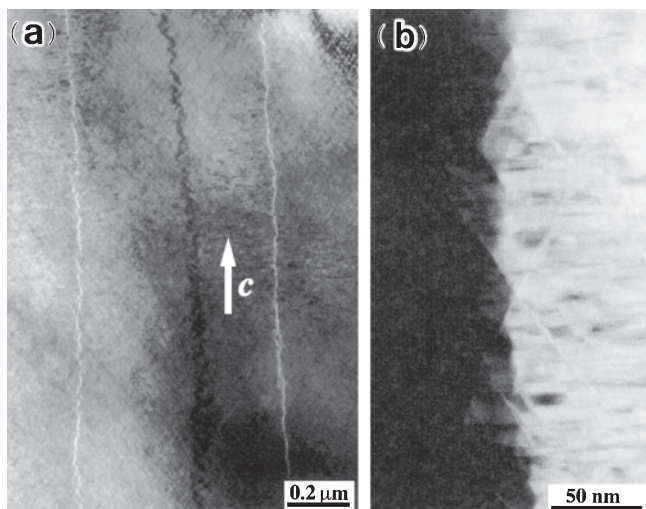


図4 デフォーカス法(a)とインフォーカス法(b)でのSm-Co系磁石のローレンツ顕微鏡像。

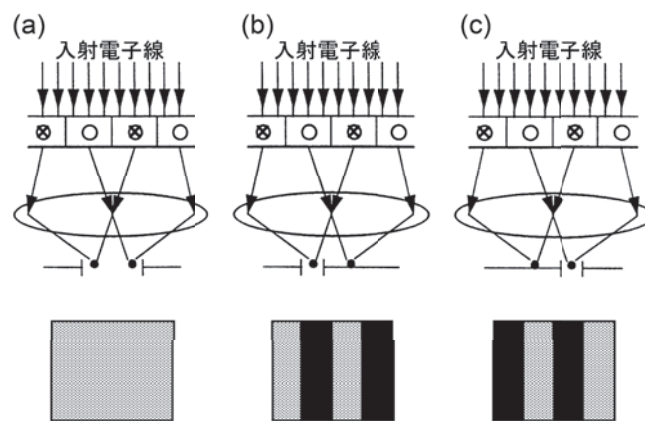


図5 インフォーカス法による磁区観察。

4. 各種磁場印加システム

4.1 試料傾斜による対物レンズ磁場の導入

磁区観察を行うには、一般に電子顕微鏡の対物レンズの磁場は小さく抑える必要があるが、この対物レンズの弱い残留磁場を利用して軟磁性体の磁化過程を観察することができる。対物レンズの磁場 (H) は、通常薄膜試料面にほぼ垂直にかかっており、軟磁性薄膜内に形成される環流磁区には直接影響を与えない。しかし、試料を傾斜させることにより、図 6 に示すように試料面内に、 $H_{\parallel} = H \sin \theta$ の磁場を導入することができる¹⁴⁾。

4.2 試料ホルダへの電磁石の装着

磁性試料の薄膜面内に直接磁場を印加するためには、試料ホルダの先端に電磁石を導入するのが有効である。図 7 はコイルを用いた電磁石を試料ホルダに装着した例である¹⁵⁾。電磁石で発生した磁場は、磁気回路を通して、試料ホルダ先端の磁極間で試料に導入され、磁化過程が観察できる¹⁶⁾。磁極間に発生する磁場は、試料面内だけでなく試料の上下の空間にも広がるため、一般に入射電子は印加磁場の増大とともに、大きな偏向を受ける。このため、通常、電磁石によって印加できる磁場は 40 kA/m (50 mT) 程度に制限される。

図 7 では、コイルを備えた電磁石を持つ磁場印加ホルダの例であったが、コイルを用いずに直線的な電線上に試料を直接配置する磁場印加方式もある。図 8 は 50 nm 以下の電導性の薄膜帯の上に数ミクロン径の円盤状の磁性体を装着したものの模式図である。この薄膜帯に電流を流すと、帯を取り巻くように磁場が生じ、磁性体円盤に対し外部磁場を印加することができる。印加できる磁場の大きさは

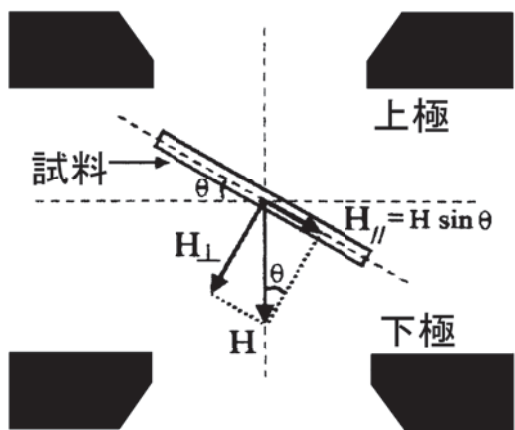


図 6 対物レンズの残留磁場による試料面内への磁場印加。

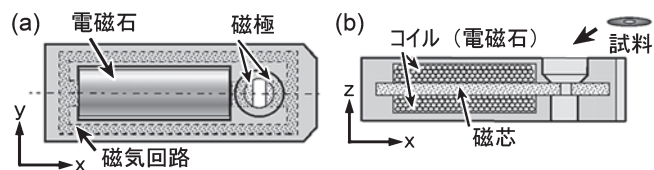


図 7 磁場印加ホルダ先端の模式図。(a) 平面図。(b) 断面図。

0.3 kA/m (0.4 mT) 程度であるが、数百 MHz の交流電流を流しての観察が可能であり、ボルテックスの共鳴運動が観察されている¹⁷⁾。同様の原理に基づく磁場印加ホルダの例として、直径 100 μm 程度の二本の平行な金線の上に試料を配置して、金線に電流を流すことで磁場を印加する様式も報告されている¹⁸⁾。

4.3 ピエゾ駆動ホルダへの磁性針の装着

試料ホルダに電磁石を導入した場合の印加磁場は、空間に漏れ出る磁場の影響により入射電子は大きく偏向を受けるため、印加磁場は 40 kA/m (50 mT) 程度に制限される。より大きな磁場を試料に印加するためには、発生する磁場を局在化させればよい。このような磁場の局在を目的として、異方性磁場の強いハード磁性体を針状にして、ピエゾ駆動により試料に接近させる手法が提案されている¹⁹⁾。図 9 (a) は、永久磁石 Nd-Fe-B の磁性針をピエゾ駆動により試料に接近させて磁場 (赤矢印) を印加する様子が模式的に記されている。また、図 9 (b) は、実際に利用している

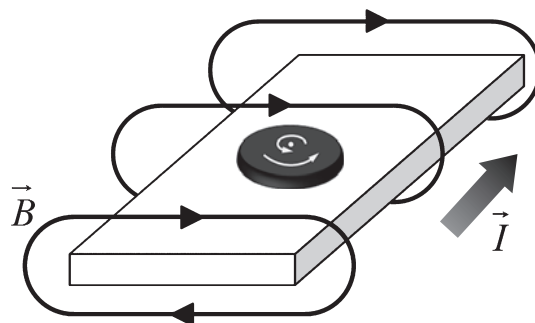


図 8 直接的電流印加による磁場印加機構。

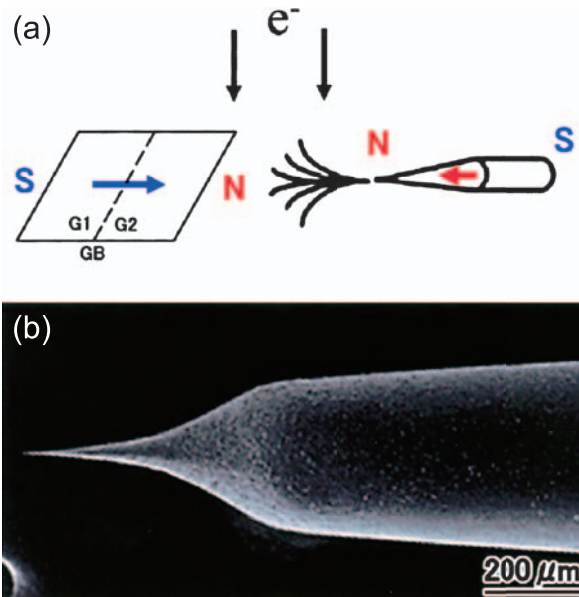


図 9 (a) 永久磁石製の磁性針を用いた磁場印加法。点線は結晶粒 G1 と G2 間の粒界 (GB) を示す。(b) 磁性針の走査電子顕微鏡像。

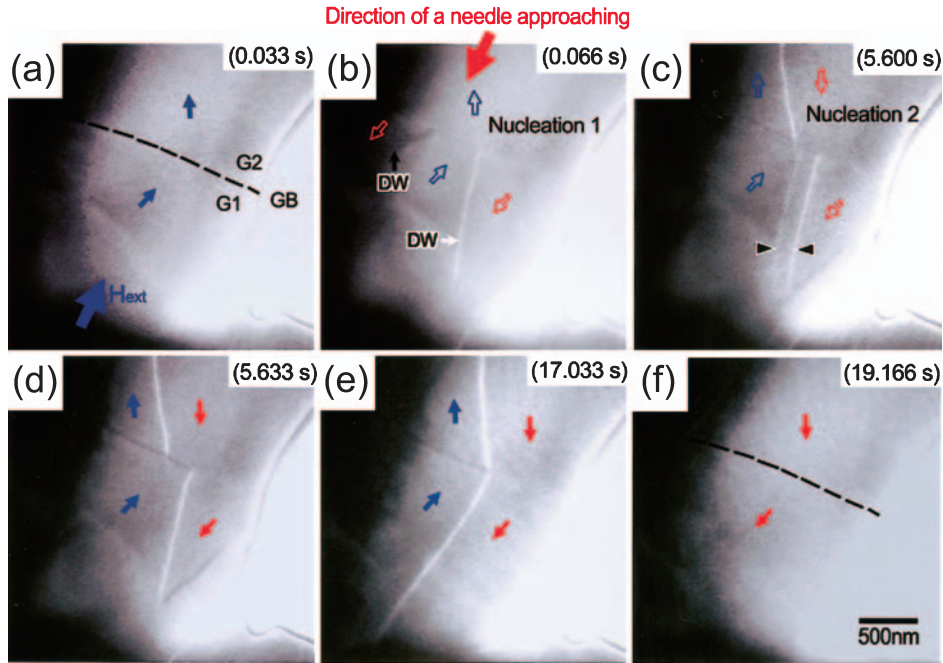


図 10 Nd-Fe-B 永久磁石における磁化反転の核生成過程を撮影したローレンツ顕微鏡像のスナップショット。小さな青と赤の矢印は磁化の方向を、また (b) の大きな赤の矢印は磁性針の磁化と接近方向を示す。

Nd-Fe-B の磁性針の走査電子顕微鏡像である。試料近傍まで磁性針が近づいた場合には、800 kA/m (1 T) に近い磁場を印加することが可能であり、ハード磁性体の磁化過程を観察することもできる。図 10 は、焼結法により作製された Nd-Fe-B 永久磁石内で逆磁区発生過程を観察した例である。薄膜試料は集束イオンビーム (FIB) で作製し、(a) の点線の領域には結晶粒界が存在し、青矢印方向に磁化されている。上方から磁性針が近づくと、結晶粒界から逆磁区が発生し、次第に、逆並行の磁化の領域が増大し、磁化されてゆく様子が追跡されている²⁰⁾。

4.4 磁場印加と偏向システムを同期させた交流磁場印加システム

上述した磁場印加機構を用いることで、電子顕微鏡内で試料中へ磁場を導入でき、磁壁移動の「その場観察」が可能となるが、この際、印加磁場で電子線が偏向するためスクリーン上で像が移動してしまう。交流磁場を印加する場合には像の移動も速いので、手で像を追跡することは困難で、印加磁場と同期させた偏向系の利用が必要となる。最近筆者らのグループで上述の磁場印加ホルダを含めた電子顕微鏡システムを改良し、交流磁場下でもその場観察できる手法を開発した²¹⁾。図 11 に磁場印加システムの概略図を示す。磁場印加試料ホルダの電磁石に、波形発信器で作製した任意の波形の交流電流を流すことで、試料に対し動的な磁場を印加することが出来る。磁場印加に伴う像の移動を抑えるために試料上部には 2 段の電子線偏向磁極が付いており、印加磁場に合せて電子線の入射方向を動的に制御することで像の移動が抑えられる仕組みである。また、入射電子の振れ角の幅を調節することで任意のデフォーカス量での動的観察が可能であ

る。1 Hz 程度のサイン波や三角波の信号で磁場を印加すると、磁壁が信号に合わせて滑らかに移動の様子が観察できる。また、周波数の上限については 1 kHz 程度まで観察できることを確認している。

図 12 に電磁鋼板の観察例を示す。鋼中に AlN 介在物がみられ、回折条件を二波励起に近づけることで、介在物周りの歪み場や転位のコントラストも観察された。この状態で磁壁を低周波のサイン波 (± 2.4 kA/m (± 3.0 mT) 程度) の外部磁場で緩やかに駆動したところ、磁壁が介在物にピン止めされる様子が動的に観察された。図は顕微鏡の小蛍光板に映った像をビデオカメラで撮影したスナップショットである。左側の画像はオリジナルの画像で、右側の画像は介在物を矢先で、磁壁を点線で強調している。このように、微細な介在物とその周辺に生ずる反磁場と磁壁の相互作用

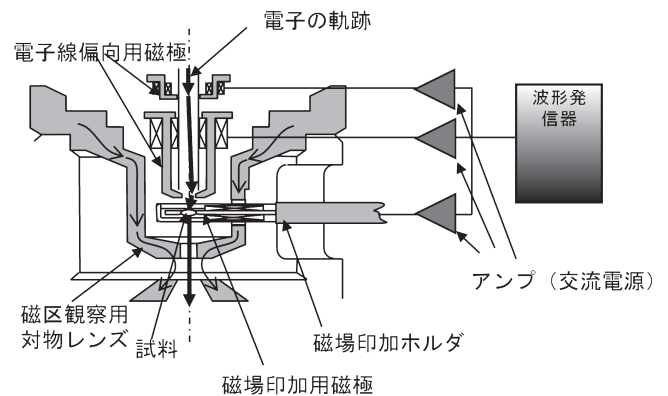


図 11 交流磁場印加システムの模式図。

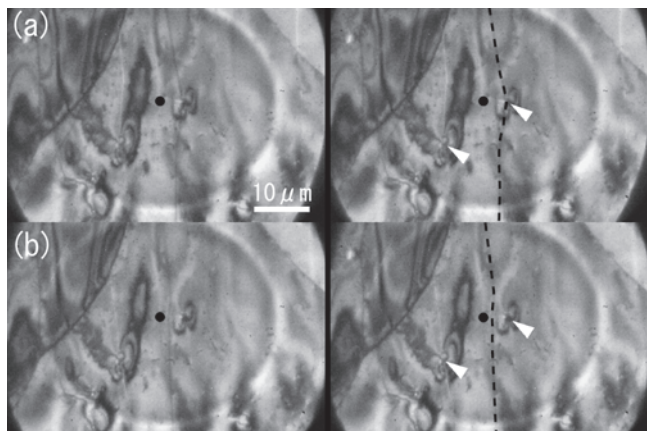


図 12 動的磁場下 (1.0 Hz, ± 2.4 kA/m (± 3.0 mT)) で観察した無方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像。右図では磁壁を破線で、AlN 介在物を矢先で強調している。(a) 磁壁が介在物にピン止めされているところ。(b) 磁壁が介在物から外れたところ。

を動的に観察できる手法はローレンツ顕微鏡法しかなく、本手法は軟磁性材料のヒステリシス損失の機構を解明する上で極めて有効である。

5. まとめ

透過電子顕微鏡の空間分解能は、加速電圧の高圧化、そして最近の球面収差補正システムの導入により、著しい向上が図られてきている。一方、磁区観察においては、試料位置での磁場を弱く抑える必要があり、空間分解能は必然的に低くなる傾向にあり、ローレンツレンズの改良と導入は、まだまだ限られたものとなっているのが実情である。しかしながら、電気自動車のモータや高密度記録システムのための磁気記録媒体など、今後ナノテク技術開発を行う上で重要な、優れた特性をもつ磁性材料を創出するためには、高い分解能での磁区観察の進展は必須であり、今後精力的なローレンツレンズと磁場印加システムの開発が望まれる。

透過電子顕微鏡を用いた磁性体の磁氣的構造の観察法として、本稿では述べなかったが電子線ホログラフィーがあり、この場合には磁束分布を詳細に観察することができる^{22~24)}。この電子線ホログラフィーの観察においても、ローレンツレンズの利用は有効である。一方、電子線ホログラフィーでは、電子の高い干渉性を必要とするため、電子ビームを集束させず、弱い平行ビームでの観察を行う必要があり、動的な観察は一般に困難である。今後各種先端磁性材料の詳細な磁区構造とその磁化過程を明らかにする上で、電子線ホログラフィーによる定量的な磁束の観察と、ローレンツ顕微鏡法による磁化過程の動的観察の併用が極めて有効と考えられる。

謝 辞

ローレンツ顕微鏡内での磁場印加システムの開発とその応用に際しては、日本電子(株)井上雅夫氏、住友金属工業(株)谷山明氏、東北大学多元物質科学研究 村上恭和氏の協力を得ている。ここに記して謝意を表したい。

文 献

- 1) Shirota, K., Yonezawa, A., Shibatomi, K. and Yanaka, T.: *J. Electron Microsc.*, **25**, 303-304 (1976)
- 2) Shindo, D., Park, Y.G., Murakami, Y., Gao, Y., Kanekiyo, H. and Hirose, S.: *Scr. Mater.*, **48**, 851-856 (2003)
- 3) Tsuno, K. and Inoue, M.: *Optik*, **67**, 363-376 (1984)
- 4) Tsuno, K.: *Rev. Solid State Sci.*, **2**, 623-658 (1988)
- 5) Hirsch, P.B., Howie, A., Nicholson, R.B., Pashley, D.W. and Whelan, M.J.: *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Butterworth, London (1968)
- 6) Grundy, P.J. and Tebble, R.S.: *Adv. in Phys.*, **17**, 153-242 (1968)
- 7) Yang, J.M., Shindo, D., Lim, S.H., Takeguchi, M. and Oikawa, T.: *Proc. 14th Int. Cong. On Electron microscopy, Cancun Mexico, Edited by H.A.C. Benavides and M.J. Yakaman*, **11**, 559 (1998)
- 8) Yang, J.M., Shindo, D. and Hiroyoshi, H.: *Mater. Trans. JIM.*, **38**, 363-366 (1997)
- 9) Harada, K., Matsuda, T., Bonevich, J., Igarashi, M., Kondo, S., Pozzi, G., Kawabe, U. and Tonomura, A.: *Nature*, **360**, 51-53 (1992)
- 10) 石塚和夫: 顕微鏡, **40**, 188-192 (2005)
- 11) Teague, M.R.: *J. Opt. Soc. Am.*, **73**, 1434-1441 (1983)
- 12) Paganin, D. and Nugent, K.A.: *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 2586-2589 (1998)
- 13) Chapman, J.N., Batson, P.E., Waddell, E.M. and Ferrier, R.P.: *Ultramicrosc.*, **3**, 203-214 (1978)
- 14) Dunin-Borkowski, R.E., McCartney, M.R., Kardynal, B., Parkin, S.S.P., Scheinfein, M.R. and Smith, D.J.: *J. Microsc.*, **200**, 187-205 (2000)
- 15) Inoue, M., Tomita, T., Naruse, M., Akase, Z., Murakami, Y. and Shindo, D.: *J. Electron Microsc.*, **54**, 509-513 (2005)
- 16) Yoo, J.H., Murakami, Y., Shindo, D., Atou, T. and Kikuchi, M.: *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 047204-1-047204-4 (2004)
- 17) Gründmayer, J. and Zweck, J.: *Proc. 16th International Microscopy Congress (International Federation of Societies of Microscopy 2006)* pp. 1541
- 18) Yi, G., Nicholson, W.A.P., Lim, C.K., Chapman, J.N., McVitie, S. and Wilkinson, C.D.W.: *Ultramicrosc.*, **99**, 65-72 (2004)
- 19) Shindo, D., Park, Y.G., Gao, Y. and Park, H.S.: *J. Appl. Phys.*, **95**, 6521-6526 (2004)
- 20) Park, H.S., Park, Y.G., Gao, Y. and Shindo, D.: *J. Appl. Phys.*, **97**, 033908-1-033908-2 (2005)
- 21) Akase, Z., Shindo, D., Inoue, M. and Taniyama, A.: *Mater. Trans.*, **48**, 2626-2630 (2007)
- 22) Tonomura, A.: *Electron Holography, 2nd Ed.*, Springer-Verlag (1999)
- 23) 進藤大輔, 村上恭和: 顕微鏡, **39**, 57-61 (2004)
- 24) Shindo, D. and Murakami, Y.: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **41**, 183002 (21 pp) (2008)