

サブナノスケールで磁気構造を可視化する電子顕微鏡技術の開発

～次世代スピントロニクスデバイスの研究開発を加速すると期待～

配布日時：平成29年10月12日14時
国立研究開発法人 物質・材料研究機構

概要

1. NIMSは、ナノメートル以下のスケールで物質の磁気構造を観察することができる高分解能ローレンツ顕微鏡法⁽¹⁾を世界で初めて確立しました。これにより希土類金属ジスプロシウムで形成される磁気ソリトン⁽²⁾及び磁場誘起ナノスケール磁気相分離⁽³⁾を可視化することに成功しました。本研究で開発された高分解能磁気イメージング手法は次世代磁性材料の研究開発をさらに加速させるものであると考えられます。
2. 近年、急速に進展している次世代磁性材料、特にスピントロニクス⁽⁴⁾の分野においては、ナノスケールで変化する磁場をより高空間分解能で可視化する技術の開発が求められています。現在、直接観察による磁気イメージングで有力な手法の一つが、透過電子顕微鏡を用いたローレンツ顕微鏡法です。しかし、この方法で用いる特殊な電子レンズ（ローレンツレンズ）は球面収差⁽⁵⁾や色収差⁽⁶⁾が大きいいため、磁気構造の分解能は2-10 nm程度に留まっていました。ナノスケールの磁気構造を正確に知るためには1 nm以下の空間分解能が必要です。
3. 本研究チームは、球面収差補正装置と電子線単色化装置⁽⁷⁾を同時に組み合わせて用いることで、ローレンツレンズの球面収差等の高次収差と色収差を大幅に低減し、0.6 nm以下のサブナノスケールの空間分解能を有する高分解能ローレンツ顕微鏡法を世界で初めて確立することに成功しました。希土類金属ジスプロシウム（Dy）では、スピントロニクスへの応用が期待される複数の磁気相が存在することが示唆されています。本手法を用いてこの磁気相を観察した結果、無磁場下で形成される磁気ソリトンの存在が明らかになりました。また、複数の磁気相が外部磁場により誘起され共存する磁場誘起ナノスケール磁気相分離を可視化することに成功しました。今回明らかになったナノスケールの磁気微細構造と磁気相分離は、スピントロニクスの研究分野において重要な基礎的知見であると考えられます。
4. 次世代のスピントロニクスデバイスの研究開発においては、磁性体内部で形成されるナノスケールの磁気構造を制御することにより、新しい機能特性の発現を目指す研究が活発に行われています。本研究で開発された、サブナノスケールで磁気構造を可視化するローレンツ顕微鏡法は、これらの研究開発を加速させるものと考えられます。
5. 本研究は、国立研究開発法人物質・材料研究機構(NIMS) 先端材料解析研究拠点 電子顕微鏡グループ及び技術開発・共用部門 電子顕微鏡ステーション 長井拓郎主任エンジニア、先端材料解析研究拠点 木本浩司副拠点長、電子顕微鏡ステーション 竹口雅樹ステーション長らの研究チームによって行われました。本研究の一部はJSPS 科研費 JP17K04984 及び文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業の支援を受けて行われ、日本エフイー・アイ株式会社の伊野家浩司シニアリサーチスペシャリスト（現株式会社日本ローパー）との共同で行ったものです。
6. 本研究成果はアメリカ物理学会の論文誌 Physical Review B (Rapid Communications)のオンライン版に現地時間2017年9月19日に掲載されました。また、同誌のEditors' Suggestion（注目論文）に選ばれました。

研究の背景

強磁性体、反強磁性体等の種々の磁性体が示す興味深い磁氣的・電氣的性質を理解するためには、磁性体内部に形成される磁区構造や磁壁の内部構造だけでなく、より微視的な磁気微細構造や磁気相分離組織を明らかにすることが重要です。特に、近年急速に進展している次世代エレクトロニクスであるスピントロニクスの分野においては、強磁性ナノ構造体やヘリカル磁性体⁽⁸⁾、磁気スキルミオン⁽⁹⁾等の磁気構造体の内部で、ナノスケールで変化する磁場をより高空間分解能で可視化する技術の開発が求められています。

現在、直接観察による磁気イメージングで有力な手法の一つが、透過電子顕微鏡を用いたローレンツ顕微鏡法です。透過電子顕微鏡は電子を用いて試料の投影拡大像を観察する装置です。ローレンツ顕微鏡法はこの透過電子顕微鏡を用い、磁性体試料に入射した電子が磁性体内部の磁場によりローレンツ力を受けて偏向されることを利用して、磁氣的な微細構造を観察する手法です。この観察手法では、試料に磁場が印加されない、専用のローレンツレンズを用いる必要があります。このローレンツレンズは球面収差や色収差が大きく、通常の透過電子顕微鏡観察で用いる対物レンズと比較すると、レンズとしての性能は大幅に劣るため、磁気構造の分解能はおよそ2-10 nm程度に留まっていた。このため、ローレンツ顕微鏡法の高空間分解能化のためには新たな技術開発が望まれていました。

研究内容と成果

長井主任エンジニアらは、球面収差補正装置と電子線単色化装置を同時に組み合わせることで、ローレンツレンズの球面収差等の高次収差と色収差を大幅に低減し、0.6 nm以下の空間分解能を有する高分解能ローレンツ顕微鏡法を世界で初めて確立することに成功しました(図1)。球面収差補正装置は通常の透過電子顕微鏡観察において対物レンズの高次収差を補正することに用いられていますが、今回ローレンツレンズの収差を補正する新たな電子光学系を採用し、ローレンツレンズの球面収差係数を1/1000以下に減少させました。また、同時に、電子線単色化装置を用いて電子線のエネルギー幅を1/6以下に減少させることで、空間分解能を0.6 nm以下まで向上させることが可能となりました。これにより層状マンガ氧化物の0.62 nmの周期の格子像が観察できることが確認されました(図2)。

この手法を利用して希土類金属ジスプロシウムの低温相において発現する磁気微細構造を観察した結果、無磁場下で形成される磁気ソリトンの存在が明らかになりました(図3)。無磁場下での昇温により強磁性相からヘリカル磁性相に相転移する過程において、幅3 nm程度の孤立した強磁性単一ドメインである磁気ソリトンが形成されることが捉えられました。このような無磁場下で形成される磁気ソリトンは本方法により初めて実空間において観察されました。

さらに、複数の磁気相が外部磁場により誘起され共存する磁場誘起ナノスケール磁気相分離を可視化することに成功しました(図4)。温度一定の状態ではヘリカル磁性相に外部磁場を印加すると、ナノスケールのヘリカル磁気構造が歪んだ磁性相が現れ、さらに磁場強度を強めると磁気モーメントが扇形に変調するファン磁性相⁽¹⁰⁾が現れて、これらのナノスケールの磁気相が共存する磁気相分離状態が形成されることが明らかになりました。この磁気相分離は中性子回折実験によりその存在が示唆されていましたが、本方法によりナノスケールの相分離組織を実空間で捉えることができました。

今回明らかになったナノスケールの磁気微細構造と磁気相分離は、スピントロニクスの研究分野において重要な基礎的知見であると考えられます。

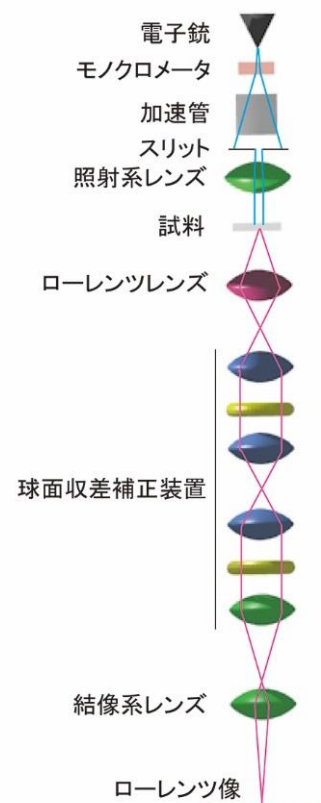


図1 今回開発した、球面収差補正装置とモノクロメータを用いた高分解能ローレンツ顕微鏡法の電子光学系の模式図。

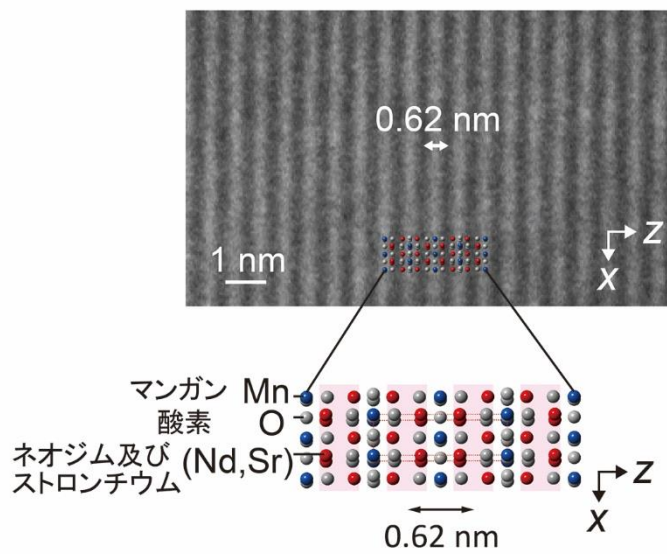


図2 本方法を用いて観察された層状マンガン酸化物 $\text{Nd}_{0.2}\text{Sr}_{1.8}\text{MnO}_4$ の電子顕微鏡像。0.62 nmの周期の格子像が観察できる。

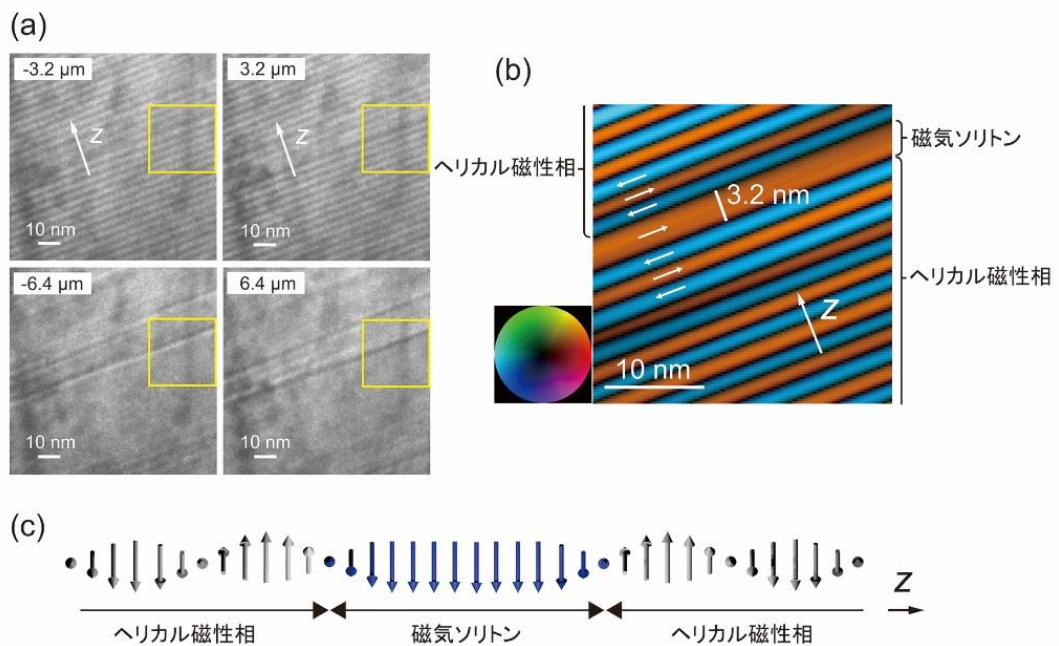


図3 (a)127 Kにおいて異なるデフォーカス⁽¹¹⁾ ($\pm 3.2 \mu\text{m}$, $\pm 6.4 \mu\text{m}$)で観察されたジスプロシウムローレンツ像。(b) 黄色線で示した領域の面内磁化分布。(c) ヘリカル磁性相と共存する磁気ソリトンの磁気構造の模式図。

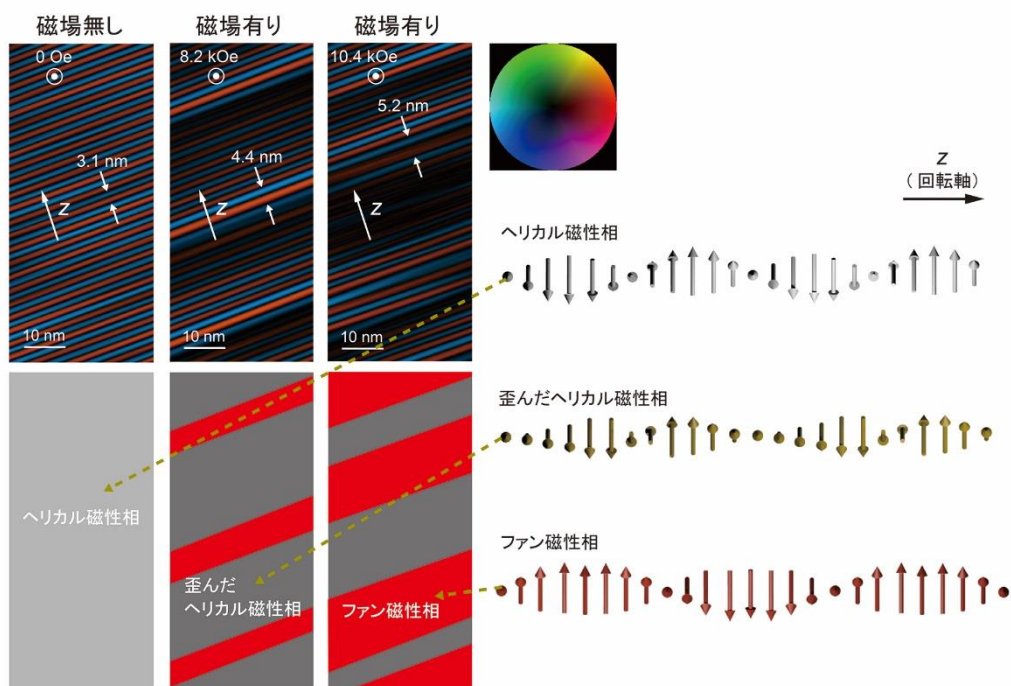


図4 142 Kにおいて観察されたジスプロシウムの磁場誘起ナノスケール磁気相分離。8.2 kOeの大きさの磁場が有ると歪んだヘリカル磁性相とファン磁性相が共存し、10.4 kOeではファン磁性相がさらに成長している。

今後の展開

次世代のスピン트로ニクスデバイスの研究開発においては、磁性体内部で形成されるナノスケールの磁気構造を制御することにより新しい特性を目指す研究が活発に行われています。このためには発現する磁気構造を明確に捉えることが必須です。本研究で開発された、サブナノスケールで磁気構造を可視化するローレンツ顕微鏡法は、これらの研究を加速させるものと考えられます。また、この高分解能磁気イメージング技術は固体物理、材料科学等の基礎科学分野やエレクトロニクス、IT等の多様な産業分野における研究開発の進展に寄与するものと考えられます。

掲載論文

題目：Real-space observation of nanoscale magnetic phase separation in dysprosium by aberration-corrected Lorentz microscopy

著者：長井拓郎、木本浩司、伊野家浩司、竹口雅樹

雑誌：Physical Review B (Rapid Communications)

掲載日時：2017年9月19日（現地時間）

用語解説

(1) ローレンツ顕微鏡法

磁性体試料に入射された電子が磁性体内部の磁場によりローレンツ力を受けて偏向されることを利用して磁性体の磁化を観察する、透過電子顕微鏡を用いた観察手法。ローレンツ力とは、電磁場中で運動する荷電粒子が受ける力を指す。

(2) 磁気ソリトン

磁気モーメントが一方向に揃った、孤立した強磁性の単一ドメイン。

(3) 磁気相分離

物質中の磁気秩序が単一でなく、異なる複数の磁気秩序に分離・共存した状態。超巨大磁気抵抗効果を示

すペロブスカイト型マンガン酸化物等において、磁気相分離と電磁気特性との密接な関わりが指摘されている。

(4) スピントロニクス

電子がもつ「電荷」と「スピン」という二つの自由度を利用し、新しい動作原理に基づくデバイスを構築する工学分野。「電荷」から生じる電流、電圧だけでなく「スピン」の向きも信号・情報として利用する。

(5) 球面収差

電子線のレンズへの入射角の違いにより生じる理想的な結像からのずれ。通常の透過電子顕微鏡観察では、対物レンズに大きな角度で入射した電子線ほど大きく屈折されるため、一点に集まらずに広がり、像がぼける。

(6) 色収差

電子線のエネルギーの広がりにより生じる理想的な結像からのずれ。電子線がレンズに入射する際、エネルギーにより屈折率が異なるため、一点に集まらずに広がりを持ち、像がぼける。

(7) 電子線単色化装置 (モノクロメータ)

電子用のプリズムを用いてエネルギー分散させ、スリットを用いて特定の波長 (単色) の電子線を取り出す装置。通常の電子銃のエネルギー幅は 1 eV 程度であるが、この装置により 0.2 eV 以下に低減できる。

(8) ヘリカル磁性体

一つの原子面内で一方向に配列した磁気モーメントが、原子面が変わるごとに向きを少しずつ変え、らせん状に回転する磁性体。らせん周期は様々で数 nm から数百 nm に及ぶ。

(9) 磁気スキルミオン

電子スピンの渦状に配列した磁気構造体。大きさは数 nm から 100 nm 程度に及ぶ。スキルミオンは条件によって結晶状に配列し、その構造は磁気スキルミオン結晶と呼ばれる。

(10) ファン磁性相

一つの原子面内で一方向に配列した磁気モーメントが、回転軸方向に沿って扇形 (ファン) に変調する磁性相。

(11) デフォーカス

ローレンツ像の観察において、ローレンツレンズの焦点を意図的にずらすこと。

本件に関するお問い合わせ先

(研究内容に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 先端材料解析研究拠点 電子顕微鏡グループ 及び 技術開発・共用部門 電子顕微鏡ステーション

主任エンジニア 長井 拓郎 (ながい たくろう)

E-mail: NAGAI.Takuro@nims.go.jp

TEL: 029-859-2132

URL: <http://www.nims.go.jp/AEMG/index-j.html>

(報道・広報に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 経営企画部門 広報室

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp