

ローレンツ顕微鏡法による電磁鋼板の動的磁区構造観察

赤瀬善太郎* 進藤大輔** 谷山 明***

1. はじめに

モーターや変圧器の鉄芯材料として幅広く利用されている電磁鋼板は、その利用の規模から特性改善が社会に及ぼす影響が極めて大きい材料である。そのため、添加元素や熱処理などを通して組織が制御され、鉄損などの特性の改善が図られているが⁽¹⁾、材料組織が磁気特性と具体的にどう関わっているのかということについては、特に、電子顕微鏡スケールにおける動的磁場下での観察技術が遅れているために不明な点が多く、基礎的な研究を必要としている。

透過電子顕微鏡(TEM)で磁区構造を観察する手法にはローレンツ顕微鏡法や電子線ホログラフィーなどがあり、いずれも磁区構造を詳細に観察できるが、磁壁移動の動的特性を観察するには不向きと考えられていた。その理由は、TEM内で試料に磁場を印加すると、その印加磁場で電子線が偏向されてしまい、像がスクリーン上で移動してしまうからである。特に周期の短い交流磁場を印加する場合は手で偏向を補正するのは不可能なので、そのような状況下で観察を行うには特別な工夫が必要となる。一方、TEMでの動的観察が可能になると、介在物等の形態観察、回折コントラストを利用した歪み場や格子欠陥の観察、また、ナノ電子回折法による結晶構造解析やEDS, EELSによる元素分布解析といった既存のテクニックと組み合わせることができるので、動的磁場下での磁気的特性について、微視的観点から新たな知見が得られる可能性がある。

そこで筆者らは、最近、TEM内で試料に交流磁場等の動的磁場を印加するシステムを考案し、磁壁移動のその場観察

手法を確立し、応用を展開してきた⁽²⁾。本稿ではまず通常のローレンツ顕微鏡法について述べ、次に動的磁場下でのローレンツ顕微鏡法の原理を解説して、電磁鋼板への応用例を紹介する。

2. ローレンツ顕微鏡法の原理⁽³⁾

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対物レンズはローレンツレンズと呼ばれている⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾。ローレンツレンズ内の試料位置における磁場は低く抑えられおり、磁性体試料の磁気構造に与えるレンズ磁場の影響は少ない。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、試料内の磁場によって入射電子にはたらくローレンツ力を利用する。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⁽⁸⁾⁽⁹⁾。

図1にデフォーカス法の観察様式の模式的模式図及び、観察例のローレンツ顕微鏡像を示す。入射電子が磁性体の試料内を通過する際、いわゆるフレミングの左手の法則によ

* 東北大学助教；多元物質科学研究所(〒980-8577 仙台市青葉区片平2-1-1)

** 東北大学教授；多元物質科学研究所

*** 住友金属工業株式会社総合技術研究所主任研究員

Lorentz Microscopy on Electrical Steel Sheets in Dynamic Magnetic Fields; Zentarō Akase*, Daisuke Shindo*, Akira Taniyama** (*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai. **Corporate Research and Development Laboratories, Sumitomo Metal Industries Ltd., Amagasaki)

Keywords: Lorentz microscopy, electrical steel sheet, alternating magnetic field, magnetic domain structure, in-situ observation

2009年5月14日受理

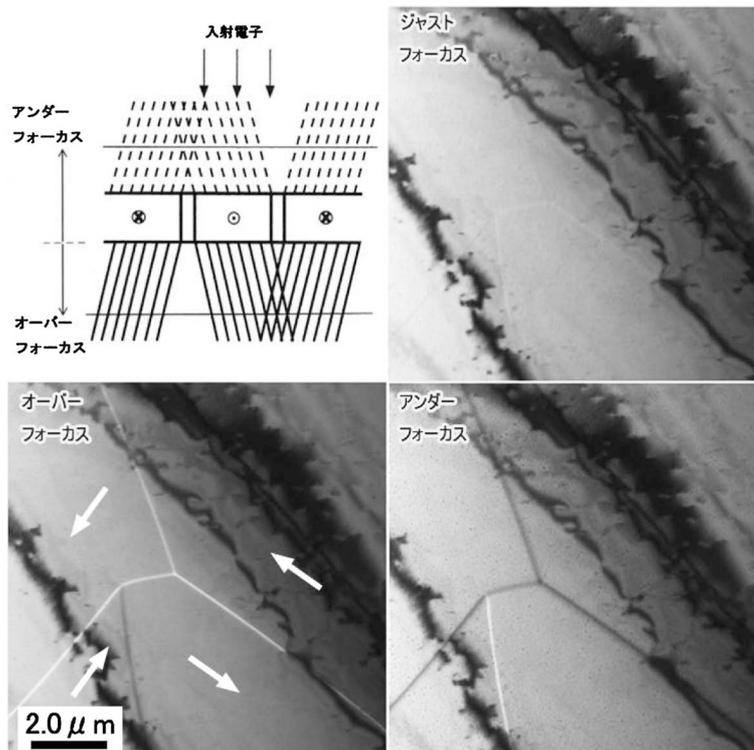


図1 ローレンツ顕微鏡法(ディフォーカス法)の模式図と、電磁鋼板のジャストフォーカス像，オーバーフォーカス像，及びアンダーフォーカス像.

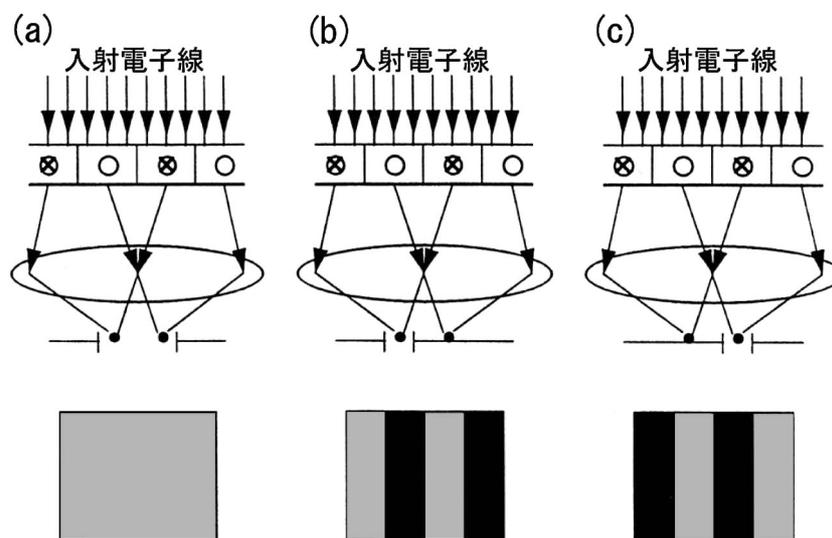


図2 インフォーカス法の模式図.

り，試料内の磁場に伴うローレンツ力によって偏向を受ける．ディフォーカス法では，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．ジャストフォーカスでは，磁区の情報には得られないが，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，試料内の磁束によって電子が偏向されることで磁壁の部分に明線または暗線の像コントラストを形成する．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．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．ローレンツ力によって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．分裂したビームのすべてを結像に用いた場合には，磁区に関する情報は何ら得られないが(図

2(a)), (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。インフォーカス法はディフォーカス法に比べ、より高倍率での観察ができる。

本稿では、前者のディフォーカス法を適用した。

3. 動的磁場下でのローレンツ顕微鏡法

(1) 装置構成

図3に磁場印加試料ホルダ先端の模式図を示す。試料ホルダ先端に電磁石と軟鉄製の磁気回路が組み込まれていて、試料に対して磁場を水平方向に印加できる⁽¹⁰⁾。図4はTEMに試料ホルダを差し込んだところの模式図である。対物レンズにはシングルギャップ型ローレンツレンズを用いている。このレンズでは試料下部の磁極間に磁束が集中するようになっていて、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0.04 mT程度までに抑えられている。試料上部には二組の電子線偏向器がついている。波形発信器で作った信号をアンプで増幅し試料ホルダと偏向器に電流を流すことで、磁場印加試料ホルダが試料に磁場を印加するのにあわせて、電子線の試料への入射方向を制御できるようになっている。この装置構成では試料周りにレンズ磁場が生じていないため、偏向器と試料ホルダの間で像の回転は生じず、同一面上で偏向される。試料に対する印加磁場は波形発信器の波形で制御するため、サイン波の交流磁場を印加することができるほかにも、三角波を使うことで、印加磁場を一定の割合で滑らかに増加させることもできる。

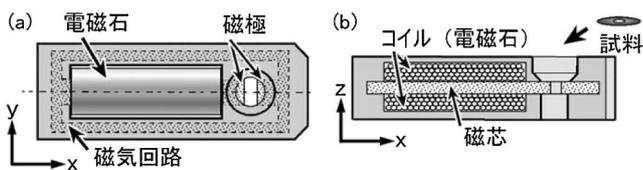


図3 磁場印加試料ホルダの模式図。

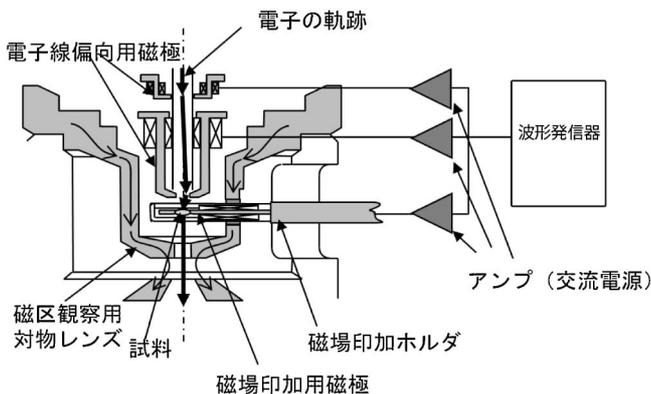


図4 試料室周りの模式図。

(2) 動的磁場下でのローレンツ顕微鏡法の原理

二段の偏向器を用いずに試料に交流磁場を印加した場合、印加磁場により電子線の経路が曲げられて試料上では照射領域が振動し、スクリーン上ではビームの位置が振動する。実際に実験をしてみると、対物ミニレンズの励磁を変化させるとこれらのビームの振れ幅が変わることに気づく。対物レンズの励磁で振れ幅を調節する作業はイメージャーによるフォーカス合わせの作業に似ているが、異なるのは、イメージャーによるフォーカス合わせでは、ジャストフォーカスで像の振動が収まるのに対し、交流磁場印加では、ジャストフォーカスでは像は振動していて、ディフォーカス時に振動が収まる点である。本来ジャストフォーカスでは電子線がどのように入射しどのように回折しようとも像は動かないはずであるが、交流磁場印加のときに像が動いたということは、試料に磁場を印加した際、試料の面内だけに磁場が生じたのではなく、試料より下側の領域に印加磁場が存在して、その磁場が偏向器の役割をして像が振動したと考えられる。(印加磁場は試料の下側だけでなく上側にも存在しているが、試料より上側は顕微鏡の照射系に属するので、この領域で電子線の軌跡が曲がってもジャストフォーカスで像が振動する原因にはならない。ジャストフォーカスで像が振動する原因は、電子線の軌跡が結像系に属する試料下側においてカーブしていることである。)この状態からフォーカスをずらしていくと、像の振動が収まるディフォーカスが見つかる。この状況を図5に示す。試料の周りには、磁場印加ホルダから生じた印加磁場が存在しているため、電子の軌道はカーブを描いている。図5中点Aを通過した電子は、試料近傍ではカーブしているが、試料から離れると直線に沿って飛んでいく。その直線を試料側に延長した線と、点Aから真下におろした垂線との交点を点Bとすると、この点Bを含む面にフォーカスを合わせると、丁度、イメージャー

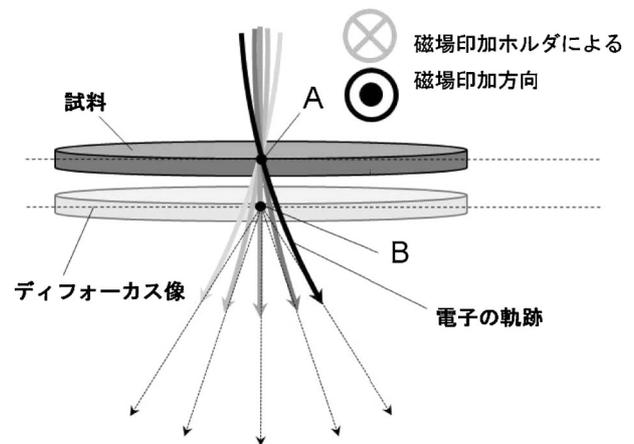


図5 磁場印加ホルダで印加磁場方向を振ったときの試料周辺での電子の軌跡の変化の模式図。実線の矢印は電子の軌跡を示しており、図中B点を含む面にフォーカスを合わせると、印加磁場を変化させてもスクリーン上で像の動きが抑えられる。

一によるフォーカス合わせと同じ状況になって、像の振動が停まる。また、像自体はディフォーカス像であるため、ローレンツ顕微鏡法のディフォーカス法の原理で磁壁の場所に暗線、明線のコントラストが生じ、動的磁場下での磁壁の様子が観察できる。

観察する磁性材料の磁化によって電子線を曲げるローレンツ力の強さが異なるため、様々な試料で明瞭な磁壁のコントラストを観察するには、任意のディフォーカス量での観察が可能でなくてはならない。それを実現するには2段の偏向器を用いて電子線の入射角度を印加磁場と同期させて調整すると良い。像がスクリーン上で振動しないための条件は、図5中点Aにフォーカスを合わせるのではなく、点Bにフォーカスを合わせることに説明したが、別の表現をすると次の二つの条件を同時に満たすことと言い換えることもできる。一つめの条件は電子線が試料に入射する際に二段偏向器の偏向によって光軸上を通過することで、二つめの条件は試料面の光軸を通過した電子線が対物(ミニ)レンズの偏向によって第一像面において光軸上に戻ってくることである。一つめの条件により、試料上の観察したい領域と電子線の照射領域の相対的な振動が抑えられて、二つめの条件により、観察したい領域がスクリーン上で振動するのを抑えられる。ディフォーカス量(=対物(ミニ)レンズの励磁)を固定した状態で、上記二つの条件を満たしながら印加磁場の強さを変化させることができると、そのディフォーカス量で動的磁区構造観察ができるということになる。試料に印加する磁場の強さ(試料近傍での電子の偏向に対応)と、観察時のディフォーカス量(対物レンズによる偏向に対応)を決めれば、電子線の試料への入射角度は上の二つの条件より一義的に決まり、二段偏向

器に流す電流の大きさが決まる。その入射角度を基に二段偏向器及び磁場印加ホルダに流す電流の比(図4における三つのアンプの比)を一定にしておけば、波形発信器で任意の信号を流しても上の二つの条件を満たすことが計算でわかった⁽¹¹⁾。図6に様々なディフォーカス量で観察する際の、試料近傍での電子の経路を示す。電子経路の曲率(印加磁場の強さに対応)は同じでも入射角度を調整することで、像が静止するときのディフォーカス量をオーバーフォーカス(図6(a)(b))やアンダーフォーカス(図6(c)(d))に設定することができる。しかし、実際の観察においては、アンダーフォーカスの条件では試料に入射する電子の角度が大きくなるため像の振動を抑えるのは難しく、オーバーフォーカスの条件の方が観察に適している。

4. 電磁鋼板の磁壁移動の観察

電磁鋼板中の磁壁移動の観察例を示す。TEM用の試料はツイングジェット電解研磨で作製した。動的ローレンツ顕微鏡法観察にはJEM-3000Fを用い、動画は小蛍光板上に映し出された像をビデオカメラで撮影している。また、EDS分析に

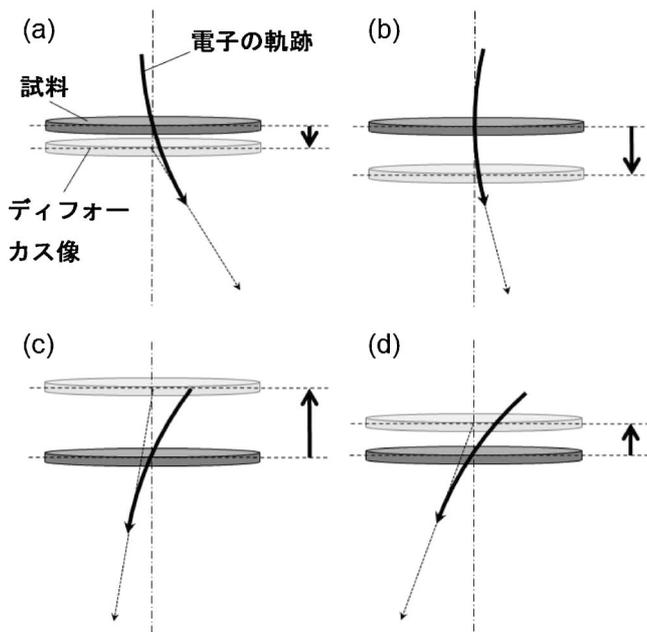


図6 各ディフォーカス状態に適した電子の経路。(a)と(b)はオーバーフォーカス。(c)と(d)はアンダーフォーカス。

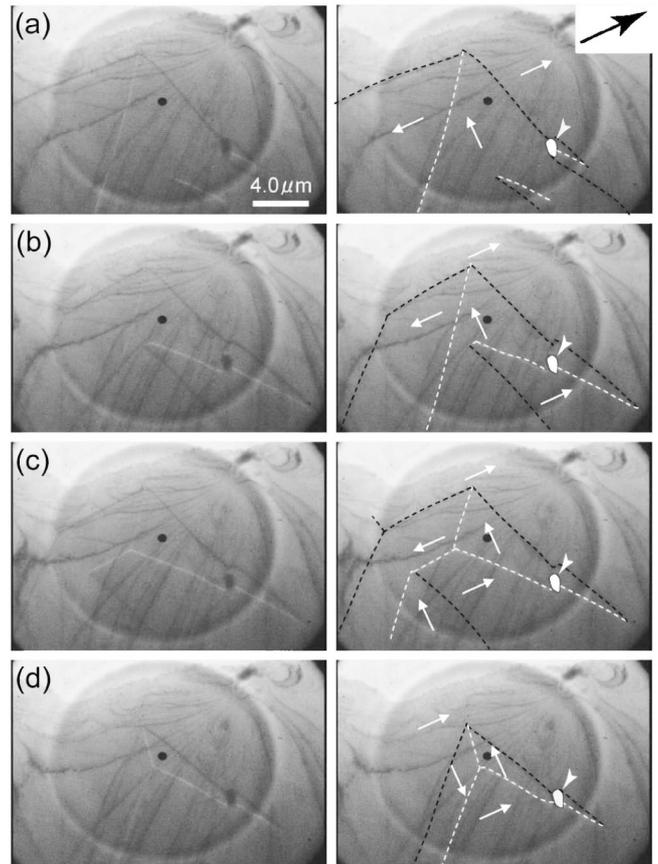


図7 動的磁場下(0.34 Hz, ± 2.5 kA/m (± 3.1 mT))で観察した二方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像のスナップショット。磁壁を破線で、 SiO_2 介在物を矢先で強調している。白矢印は磁化の方向を示す。黒矢印は増加する印加磁場の方向。

は JEM-3010 と Tecnai F30-ST を用いた。走査透過電子顕微鏡 (STEM) 観察には Tecnai F30-ST を使用した。

図 7 は動的磁場下 (0.34 Hz, ± 2.5 kA/m (± 3.1 mT)) で撮影した二方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像のスナップショットで、図中黒矢印で示した方向に磁場が印加されていく様子を捉えたものである。磁壁を破線で、磁化の方向を矢印で示している。(ビデオ画像中央の黒い丸点は TEM の小蛍光板のセンタースポットなので、無視されたい。) 試料面内に磁化容易軸の $\langle 100 \rangle$ と $\langle 010 \rangle$ が存在し、 180° 磁壁は磁化容易軸に沿っている。磁場印加に伴い、磁壁は滑らかに移動し、印加磁場と反対方向を向いた磁区の領域は次第に小さくなっていき、(d) では磁場印加方向を向いた磁区と、印加磁場に対して 90° 方向を向いた磁区だけが残っている。また、図中矢先で示した部分には SiO_2 介在物が存在しており、取り残された磁区は介在物周りの静磁エネルギーを下げる役割をしていると考えられる。磁場印加のサイクルの間、 SiO_2 介在物には磁壁が横切った状態が続いている様子が観察されているが、磁壁が空孔または非磁性介在物を横切っている場合、横切っていないときに比べてエネルギーが低くなるので、このような介在物が多数存在すると磁壁のピン止めが起こると考えられる。エネルギーの減少分は、例えば、空孔または非磁性介在物が球形の場合、次式で表される。

$$\Delta E = \frac{1}{2} \mu_0 \frac{1}{3} M_s^2 \frac{4}{3} \pi r^3 \times \frac{1}{2} + \pi r^2 \gamma \quad (1)$$

第一項は静磁エネルギーの減少分、第二項は磁壁エネルギーの減少分に対応しており、 μ_0 は真空中の透磁率、 $1/3$ は球形

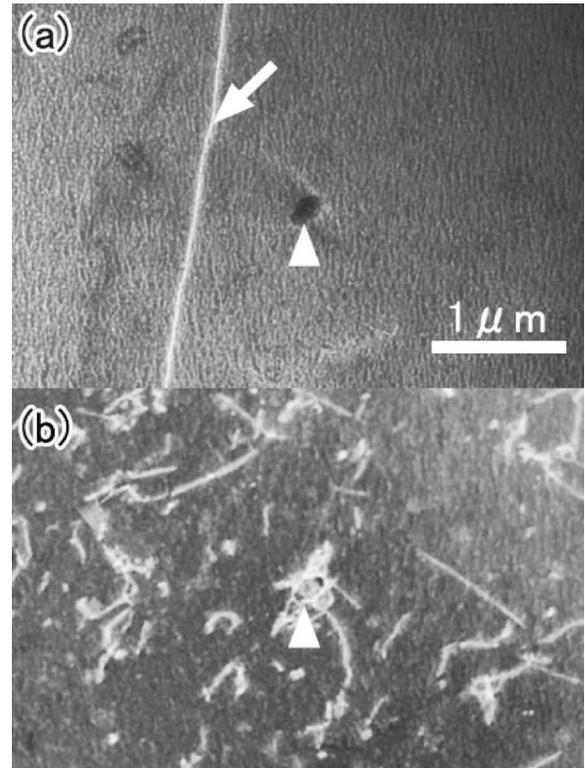


図 8 (a) 無方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像。磁壁を矢印、介在物を矢先で示した。(b) 同じ場所の暗視野 STEM 像。介在物を矢先で示した。白い線状のコントラストは転位である。

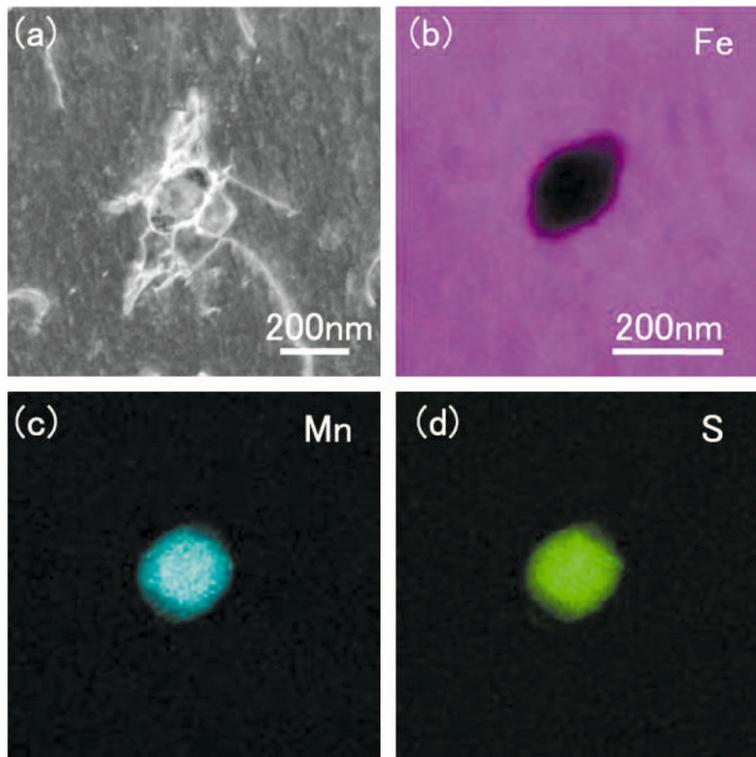


図 9 (a) 図 10 の介在物の暗視野 STEM 像。(b)-(d) STEM-EDS 法による元素マップ像。介在物は MnS であることがわかった。

の反磁場係数, M_s は母相の磁気モーメント, r は空孔または介在物の半径で, 第二項の γ は母相の磁壁の表面エネルギーである. 上式においては球形を仮定したことにより第一項については体積依存性 ($4/3 \pi r^3$), また第二項については断面積依存性 (πr^2) が存在する. 実際の観察においては同一粒内に有効体積の小さな板状の介在物が存在した場合にはピン止め効果が弱く, 式(1)と良く対応している⁽¹²⁾. 今後は更に介在物の周りに歪み場が存在する場合や, 歪み場が転位に

より緩和されている場合など, より複雑なケースについて TEM の種々の観察方法と動的磁区観察法を組み合わせる解析を行い, 微細組織とピン止め効果の相関をより詳細に解明していく計画である.

TEM の観察手法を組み合わせる例として, 動的磁場下でのローレンツ顕微鏡法と, STEM による EDS 分析を組み合わせる解析例を紹介する. 図 8(a) は無方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像である. 矢印で示した明線のコントラストは 180° 磁壁であり, 矢先で示した場所に介在物が存在している. 介在物の上下にも磁壁の薄いコントラストが観察され

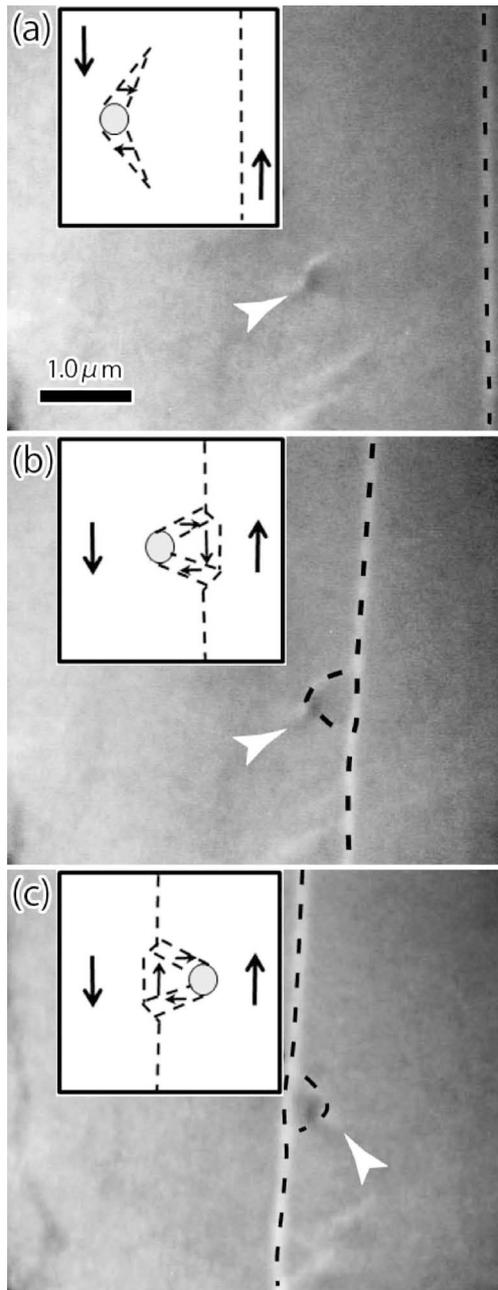


図10 動的磁場下(0.23 Hz, ± 4.3 kA/m (± 5.4 mT))で観察した二方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像のスナップショット. 磁壁を破線で, MnS 介在物を矢先で強調している. 矢印は磁化の方向を示す. 右上に介在物の周りの刃状磁区と 180° 磁壁が相互作用する様子の模式図を示す.

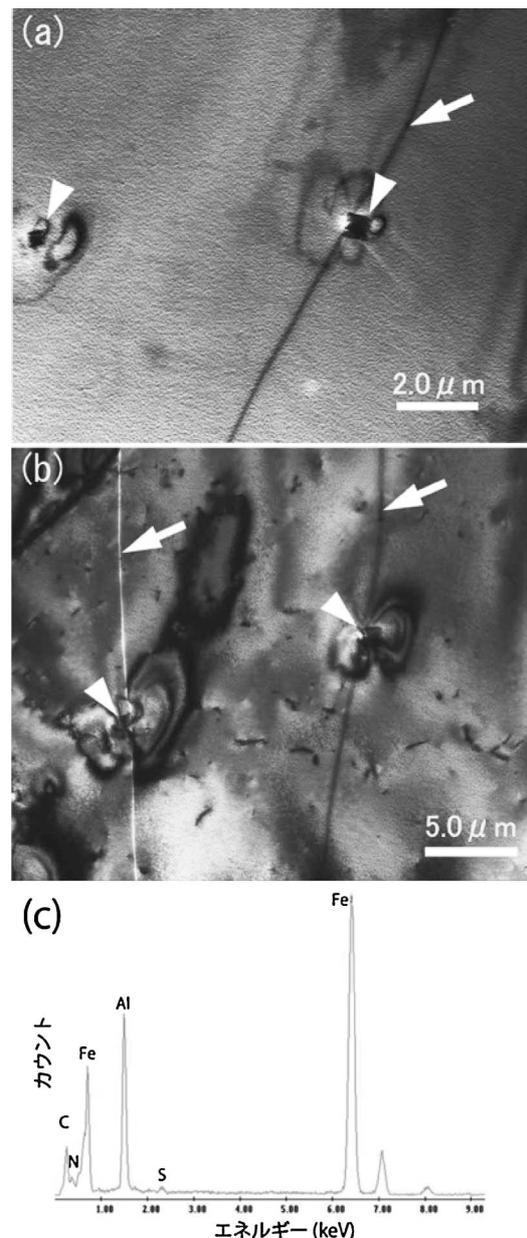


図11 CCD カメラで撮影した無方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像 (a) (b), および, 介在物からの EDS スペクトル (c). ローレンツ顕微鏡像中, 磁壁のコントラストを矢印で, AlN 介在物を矢先で強調している. (b) は二波励起に近い回折条件で撮影.

ることから、介在物の周りに静磁エネルギーを下げるための刃状の磁区が存在していることがわかる。図8(b)は同一視野の暗視野STEM像である。多数見られる白く短い線状のコントラストは転位である。このようにSTEM像では転位の分布を容易に観察することができるので、磁壁と転位の相互作用を考察する上で参考になる。図9に介在物の拡大像(暗視野STEM像)と、Fe, Mn, Sの元素マップ像を示す。これにより、介在物がMnSであることがわかった。この介在物を含んだ視野に動的磁場(0.23 Hz, ± 4.3 kA/m (± 5.4 mT))を印加したときのローレンツ顕微鏡像のスナップショットを図10に示す。MnS介在物は白い矢先で示した。また、左上に磁壁の様子を模式的に示した。180°磁壁が介在物に近づくとき、180°磁壁は介在物周りの刃状磁区と相互作用を起こし、図10(b)左上の模式図で示したような磁区構造をと

た。磁場を加えていくと、180°磁壁が介在物直上を貫く形態をとり、更に磁場を印加していくと、図10(c)で示すように、180°磁壁は(b)を左右反転させた磁区構造をとって、介在物を通過していった。この視野内には図8(b)に見られるとおり、転位が多数存在しているが、磁壁移動に及ぼす影響は介在物のものに比べて小さかった。

STEMではディフォーカス法の磁壁コントラストを観察することができないので、磁壁と転位の相互作用を動的に観察するには、ディフォーカス法で観察する際に試料を傾斜させて二波励起条件に近づけるのが有効である。図11の(a)(b)は同一場所のローレンツ顕微鏡像であるが、(a)は回折波を励起させない条件で撮影した像で、(b)は特定の回折波を励起させて二波励起に近い条件で撮影したものである。図中矢印は磁壁を、矢先はAIN介在物を示している((c)にEDSスペクトルを示す)。(b)では転位のコントラストが観察される他、AIN介在物の周辺に歪みコントラストが観察されている。図11(b)の回折条件のまま、動的磁場下(1.0 Hz, ± 2.4 kA/m (± 3.0 mT))で観察したローレンツ顕微鏡像のスナップショットを図12に示す。磁壁を破線で、AIN介在物を矢先で強調している。(a)は磁壁が介在物を貫いているところで、(b)では外部磁場の変化に伴い、磁壁は介在物部分でピン止めされたまま、介在物の上下では左側に移動しているところで、(c)は磁壁が介在物から外れたところを捉えたものである。この磁場印加条件では磁壁が介在物の周辺5 μ m以内を往復することが予測されるが、介在物だけにピン止めが起こるのではなく、介在物周辺の歪みコントラストの部分でもピン止めが起こる様子も観察された。

5. 終わりに

以上、新たに開発したTEMによる動的磁場下での磁区構造観察法について、手法の原理と電磁鋼板への適用例を紹介した。本手法は、従来の透過電子顕微鏡法(回折コントラストによる格子欠陥や歪み場の可視化、STEM観察、EDS分析など)と組み合わせることで、磁壁移動のピン止め中心となりうる微細組織を詳細に評価しつつ、その観察領域での磁壁移動の動的特性を観察できる点がユニークである。また、観察時のディフォーカス量を任意に調整できるため、電磁鋼板だけでなく、自発磁化の強さの異なる様々な軟磁性材料に対しても応用可能である。今後は高周波数の交流磁場下における磁区構造観察にも研究を展開していきたいと考えている。

本研究は科研費19760484の助成を受け、また、次の方々のご協力によって行われました。住友金属工業株式会社総合技術研究所の富田俊郎博士、屋鋪裕義博士、川田光氏、当時学生柿沼宏彰氏(現・三菱マテリアル)に対し、この場を借りてお礼申し上げます。

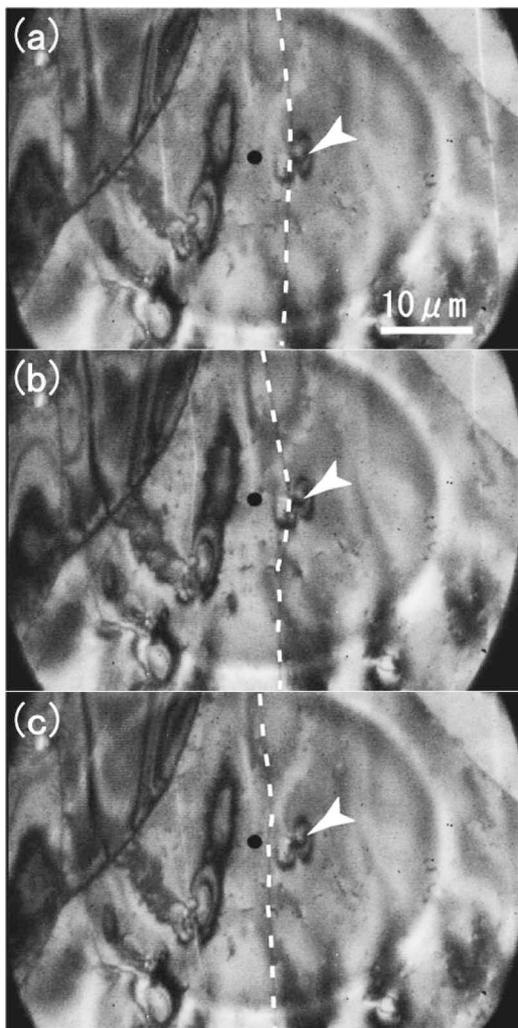


図12 動的磁場下(1.0 Hz, ± 2.4 kA/m (± 3.0 mT))で観察した無方向性電磁鋼板のローレンツ顕微鏡像のスナップショット。磁壁を破線で、AIN介在物を矢先で強調している。(a)磁壁が介在物にピン止めされているところ。(b)磁壁は移動しているが、介在物の部分ではピン止めされているところ。(c)磁壁が介在物から外れたところ。

