

小角電子回折を用いた磁性体の 磁場応答の観測

中 島 宏*

1. はじめに

磁性は結晶中の磁性元素(遷移金属元素, 希土類元素等)の電子スピンの誘発する量子現象であり, 物性物理, 固体物理学の分野において活発に研究されている。磁性体が社会に与える影響は大きく, 古くはフェライト永久磁石によるインダクタンスやモーターへの利用を始めとして磁気記録媒体等に用いられ, 日常生活に不可欠な材料となっている。磁気的な物性は, 磁性体内部の磁区構造に影響を受けていることが多い。それゆえ, 磁性体内部の磁区構造やその外場による応答を解明することは, 物性物理学の理解だけでなく応用の観点からも重要である⁽¹⁾。

磁区構造を観察する手法としては, 磁気光学効果(ファラデー効果, カー効果)を利用した光学顕微鏡やX線磁気円二色性, スピン偏極走査電子顕微鏡, 透過電子顕微鏡などがある。透過電子顕微鏡におけるローレンツ顕微鏡法は, 他の手法に比べて高い空間分解能を有しているだけでなく, 温度・磁場・応力などの環境を変化させて磁区構造を観察することが可能である。

ローレンツ顕微鏡法における磁区構造観察手法⁽²⁾として, フレネル法, フォーコー法⁽³⁾, 電子線ホログラフィー⁽⁴⁾, 微分位相コントラスト法⁽⁵⁾, 小角電子回折などが用いられている。フレネル法は, フォーカスをインフォーカスからずらすことによって磁壁を可視化することができ, 簡便であることから透過電子顕微鏡観察においてよく利用されている。しかし, フレネル法では, 像の明暗のコントラストの解釈が問題になる場合がある。そこで, 磁区構造の解析では, フレネル像に加えて磁気偏向スポットや磁区に由来する回折スポットを観測, 解析することが重要である。一般的に磁場による電子線の偏向角は小さく, 飽和磁束密度が1.5 Tの磁性体にお

いて, 加速電圧200 kV, 試料厚さ50 nmの場合の偏向角は 4.5×10^{-5} radである。そのため, このような小さな偏向角を有するスポットを観測するためには, 長距離のカメラ長(試料面から検出器までの距離)を利用する小角電子回折が必要となる⁽⁶⁾⁻⁽⁸⁾。小角電子回折では, 解析スポットから磁区構造に関する知見が得られるだけでなく, スポットを絞りで選択することで, そのスポットを生じさせている領域を実空間で可視化できる利点がある(フォーコー法)⁽⁹⁾。

筆者らのグループでは, 小角電子回折を取得できる電子光学系を構築し, 磁性体の観察に応用してきた⁽¹⁰⁾⁻⁽¹³⁾。本稿では, 小角電子回折とブラッグ反射の両方が取得できるように構築した光学系とそれを用いた磁区構造及び磁区の磁場応答を観測した結果について紹介する⁽¹⁴⁾。

2. 電子光学系

図1は対物レンズをオフにした状態での(a)電子回折と(b)暗視野法の光学系である。本光学系は, 対物レンズをオフにした状態でコンデンサーレンズと対物ミニレンズによって制限視野絞りにクロスオーバー(回折面)を形成している。小角電子回折では中間レンズ1(上段)を強励磁にすることで数十~数百 mにカメラ長を設定している。一方, ブラッグ反射を観測する場合は, 中間レンズ1の電流値を下げてカメラ長を数十 cmに設定する。また, これにより中間レンズ1下の固定絞りにブラッグ反射が遮断されることを防いでいる。本光学系では中間レンズ2(中段)と3(下段)によりカメラ長の制御が可能であり, 制限視野絞りでブラッグ反射(磁気偏向)スポットを選択することで暗視野像(フォーコー像)が得られる。また, 対物レンズを弱励磁することで試料に光軸方向の磁場を印加することができる。

本光学系の一例を次に示す。図1(c)は, 上記の光学系を

* 九州大学大学院工学研究院; 学術研究員(〒819-0395 福岡市西区元岡744)
Magnetic Domains and Their Magnetic-field Response Observed Using Small-angle Electron Diffraction Optics; Hiroshi Nakajima (Department of Applied Quantum Physics and Nuclear Engineering, Kyushu University, Fukuoka)
Keywords: magnetic materials, transmission electron microscopy, small-angle electron diffraction, phase transition, magnetic domains
2019年12月16日受理[doi:10.2320/materia.59.207]

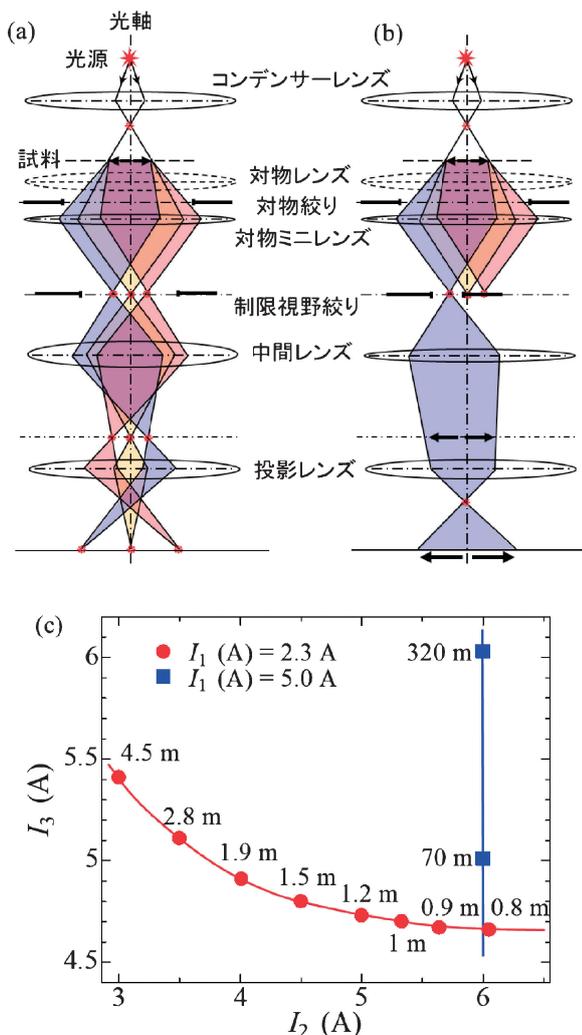


図1 対物レンズをオフにした状態での(a)電子回折と(b)暗視野法の光学系。(c)中間レンズに対するカメラ長。 I_1 , I_2 , I_3 は中間レンズ1(上段), 2(中段), 3(下段)の電流値。(オンラインカラー)

透過電子顕微鏡(JEM-2010)で構築した時の、中間レンズ2のレンズ電流(励磁電流)値 I_2 に対するカメラ長の変化を示したグラフである。長距離のカメラ長(70 m~320 m)を用いる場合は中間レンズ1の電流 I_1 は強励磁(5.0 A)で使用される。一方、ブラッグ反射を観測する数十 cmのカメラ長では I_1 は長距離のカメラ長の場合よりも弱励磁(2.3 A)で使用される。中間レンズ2の電流を上げた場合、クロスオーバーを制限視野絞り位置からずらさないために中間レンズ3の電流は増加させる。それと同時にカメラ長は4.5 mから0.8 mまで制御することが可能である。

3. 磁区構造観察結果

上記の光学系を用いてM型ヘキサフェライト($\text{BaFe}_{10.35}\text{Sc}_{1.6}\text{Mg}_{0.05}\text{O}_{19}$)の観察を行った。図2はc面における(a)220反射を用いた暗視野像と(b)電子回折図形である。暗視野像では磁区構造も同時に観察するためにデフォーカスを与えている。このような像では、磁区構造と結晶ドメインに相関がある場合、その相関を観察することができる。(a)では、結

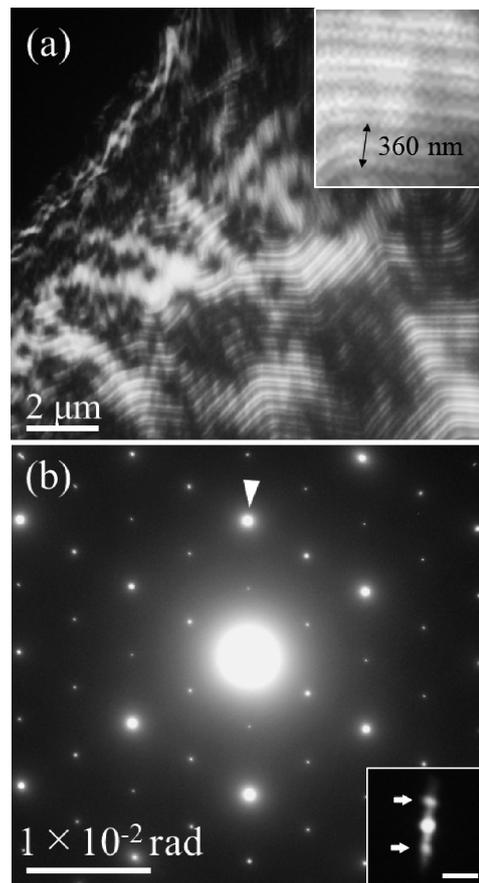


図2 M型ヘキサフェライトのc面における(a)暗視野像(挿図は拡大図)(b)電子回折図形。(b)における矢頭は暗視野像(a)に用いた反射スポット。(b)におけるカメラ長は1 m。(b)における挿図は、透過波の小角電子回折(スケールバー 10 μrad , カメラ長 320 m)。矢印は周期スポットを示す。

晶の励起があっている領域が明るく、真空と結晶の励起が合っていない領域が暗く可視化されている。そして、結晶の歪とは関係なくストライプ磁壁が存在していることが観察されている。通常の電子光学系では対物レンズを使用し対物絞りで回折スポットを選択する必要があるため、磁区構造と結晶ドメインの相関像を取得することが出来ない。また、この領域から取得した小角電子回折図形には、磁区の周期(360 m)に由来したスポットの周りに直線状のストリークが存在し、磁壁がプロホ磁壁であることが確認できる。

本光学系を用いて、超格子反射の外部磁場応答を観測する実験を行った。図3は、Y型ヘキサフェライト($\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{1.5}\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$)における00L反射の回折図形の磁場依存性である。外部磁場を印加していない場合(0 mT), 図3(b)のように(0, 0, 3δ)で表される不整合超格子反射 $\delta \sim 0.23$ が存在している。本物質におけるこの超格子反射は、プロパー型のらせん構造(図3(e))に由来する⁽¹⁵⁾。その状態から磁場を印加すると110 mTでは図3(c)のように不整合超格子反射とともに(0, 0, 1.5)で記述される整合反射が観測されている。さらに、磁場を増大させると185 mTでは(0, 0, 1.5)だけが観測され、磁場誘起相転移が起こっていることがわかる。なお、(0, 0, 1.5)超格子反射は縦円錐型らせん磁性(図3(e))であり、この相では強誘電性が生じることが報告されてい

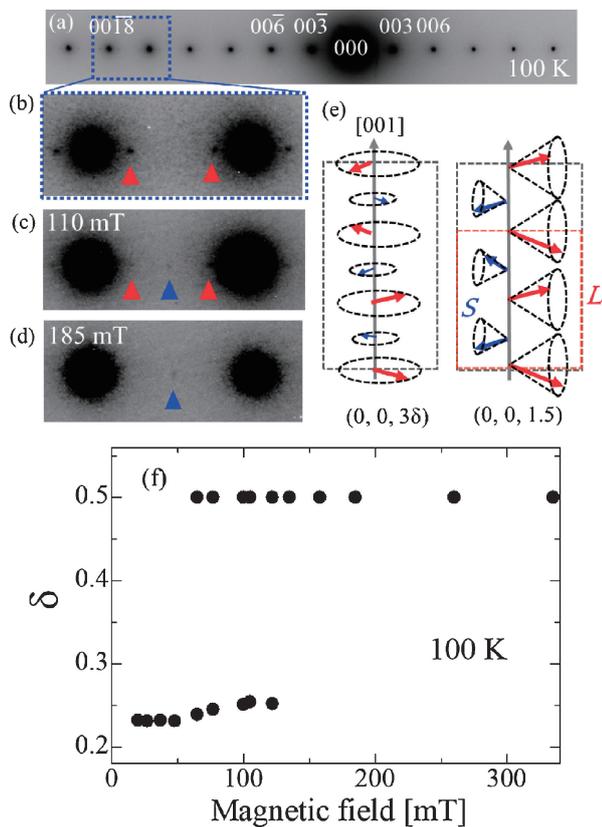


図3 (a) Y型ヘキサフェライト ($\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{1.5}\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$) における $00L$ 反射の電子回折図形。下部は (b) 0 mT, (c) 110 mT, (d) 185 mT における拡大図。0 mT では青枠で囲った領域を拡大し超格子反射強度を上げるためにコントラストを調整している。温度は 100 K。青と赤の矢頭はそれぞれ不整合反射 $(0, 0, 3\delta)$ および整合反射 $(0, 0, 1.5)$ を示す。(e) 波数 $(0, 0, 3\delta)$ と $(0, 0, 1.5)$ における磁気構造の模式図。L 及び S は大きさの異なる 2 つの磁気モーメントである。黒破線は結晶構造の単位胞、赤破線は磁気構造の単位胞。(f) 100 K でのらせん波数の磁場依存性。昇磁過程で測定。(オンラインカラー)

る⁽¹⁶⁾。

図 3(f) は、様々な外部磁場下において測定されたらせん波数の磁場依存性である。らせんの波数 δ は 0.23 から磁場の増大とともに 0.25 に変化している。波数が 0.25 になるとともに 0.5 で表される $(0, 0, 1.5)$ 反射が出現している。不整合反射と $(0, 0, 1.5)$ 反射が 80~120 mT の間で共存しているが、これは本相転移が 1 次相転移であるためと考えられる。このようならせん磁性の波数の磁場依存性は先行研究⁽¹⁷⁾でも観測されており、本光学系を用いて外部磁場を制御して電子回折を観測できていることがわかる。

本光学系によって、同一領域で暗視野像とフーコー像が取得できることを示すために Ni_2MnGa の磁区観察を行った(図 4)。フレネル像では明線と暗線が存在し磁壁が形成されていることがわかる。図 4(b) の挿図に示すように、この領域から取得した電子回折図形はブラッグ反射スポットが分裂している。分裂したスポットの 1 つを用いた暗視野像では図 4(b) のように帯状に明暗が存在している。これは強磁性マルテンサイト Ni_2MnGa で見られる双晶ドメイン(バリエント)であり、強弾性の起源であると考えられている。100 m のカメラ長を用いて透過スポットを拡大したところ 4 つ

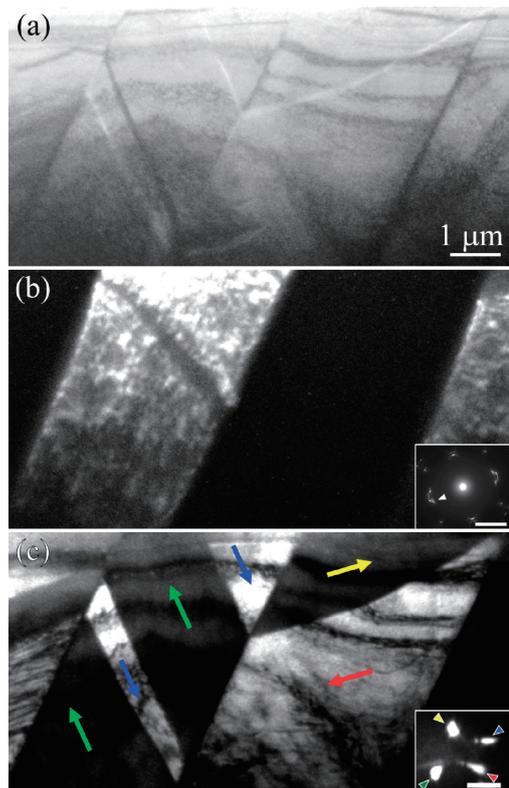


図 4 Ni_2MnGa における (a) フレネル像(アンダーフォーカス) (b) 暗視野像と電子回折図形(スケールバー 10 mrad, カメラ長 1 m)。矢頭は暗視野に用いた回折スポット。(c) フーコー像と小角電子偏向パターン(スケールバー 50 μrad , カメラ長 100 m)。フーコー像に用いた偏向スポットは右側の 2 つ矢頭で示されている。(オンラインカラー)

に分裂した磁気偏向が観測された。つまり、この領域において 90° 磁壁と 180° 磁壁を形成していることがわかる。また、分裂の幅は、大よそ 3.5×10^{-5} rad であり、磁気偏向角 $\beta = e\lambda Bt/h$ により試料内部の磁束密度 B は、0.72 T と見積もられる。ここで、 e, λ, h はそれぞれ電気素量、電子線の波長、プランク定数であり、試料厚さ t は 80 nm と仮定した。図 4(c) 挿図に示した右側 2 つのスポットを絞りで選択したフーコー像では、2 つの磁化方向を持つドメインが可視化された。暗視野像とフーコー像を比較すると 180° 磁壁は同一バリエント内に形成されるが、 90° 磁壁は異なるバリエント間で形成されている。このように本光学系では同一視野で暗視野像と電子回折図形およびフーコー像と小角電子回折図形が取得できる。そして対物レンズをオフにしたまま磁区構造を壊すことなく暗視野法が可能である。

最後に、磁場中での小角電子回折の応用例として FeGe におけるスキルミオン⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾の観察結果を示す。図 5(a) は 260 K において磁場を印加した状態でスキルミオンを形成⁽²⁰⁾させたのち、温度を下げ 140 K で観察したスキルミオン格子のフレネル像である。スキルミオンが $6 \mu\text{m}^2$ 以上に亘って存在しておりスキルミオンが長距離の秩序を有していることがわかる。図 5(b) はこの領域から取得した小角電子回折図形である。磁気回折スポットの位置は 3.9×10^{-5} rad であり、 $(65 \text{ nm})^{-1}$ に相当する。この距離はスキルミオンの格子間隔 $d = \sqrt{3} a_{\text{sk}}/2 \sim 65 \text{ nm}$ に対応しており、観測されている

