

# スピンSEMによるその場磁区観察技術開発

Spin SEM Observation of Magnetic Devices Under Various Conditions

孝橋 照生  
Kohashi Teruo

甕 久実  
Motai Kumi

日立グループで培った電子顕微鏡技術は、半導体やハードディスクなど、さまざまなデバイスの評価解析に応用されている。スピンSEM（スピン偏極走査電子顕微鏡）は、デバイスの磁気構造をナノスケールで解析する装置で、これまで磁気記録ビットの形状評価などに適用されてきた。今回、多様化するデバイス機能・評価要望項目に対応するため、新たに二つの観察技術を立ち上げた。一つは高温（～500℃）での磁区構造変化の観察、もう一つは残留磁化を有し漏洩磁界を発生する試料の観察である。これらは新規強力磁石材料の開発など、磁気デバイスの性能向上に寄与するものと期待される。

## 1. はじめに

高分解能磁区観察は、デバイス特性をマイクロな観点から解析できるため、高性能化する磁気デバイスの評価方法として有用性が高い。スピンSEM（Spin-polarized Scanning Electron Microscope：スピン偏極走査電子顕微鏡）は、強磁性体試料内部の電子が持つスピンという物理量を検出して画像化する磁区観察装置である（**図1**参照）。

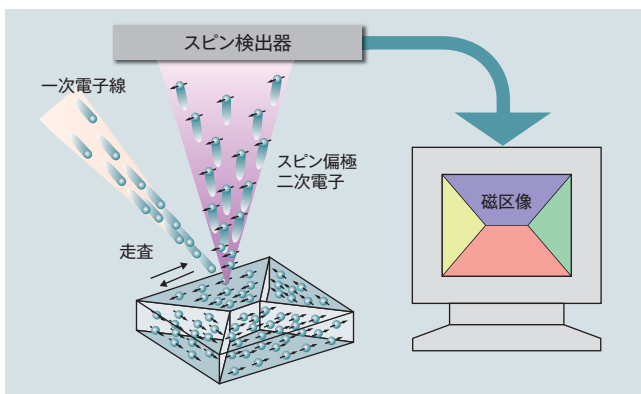


図1 | スピンSEMによる磁区観察の模式図

一次電子線を試料に照射し、放出される二次電子のスピン偏極度を検出すれば、その点の磁化がわかる。そして一次電子線を走査することにより、磁区像が得られる。

磁性体試料内部において電子スピンの向きが偏っていること、つまり電子のスピン偏極が、多くの場合磁性の起源である。このスピン偏極は、試料内部の電子が外部からの電子線照射によって試料外部へ放出される際にも保たれることがわかっている。したがって、細く絞った一次電子線を試料に照射し、放出される二次電子のスピン偏極度をスピン検出器で検出すれば、二次電子放出点の磁化の向きを判別することができる。そして一次電子線で試料表面を順次走査することにより、磁区像を得ることができる。

電子のスピン偏極度を検出するスピン検出器がこの装置の最大の特長であり、金の薄膜にスピン偏極した電子を入射させた際、散乱方向が非対称となるモット散乱を利用している<sup>1)</sup>。この原理により、磁化の方向を三次元的に定量解析できることや、試料形状の任意性の高さ、また磁化と形状情報を分離して解析可能、などの特長を備えている。

このスピンSEMは日立グループが世界に先駆け開発し<sup>1)</sup>、その後も装置の感度・分解能の改良を続ける一方<sup>2),3)</sup>、さまざまな磁気デバイスの特性評価を行ってきた。これまでのスピンSEM測定において、残留磁化の大きい試料、例えば着磁した永久磁石材を観察することは難しく、測定例は少ない。試料からの漏洩（えい）磁界が、試料へ照射する一次電子線や、信号となる試料からの二次電子に影響を及ぼし、分解能や画像のS/N（Signal-to-Noise）の劣化を引き起こすからである。また観察試料を高温に加熱しての実験は、真空度や電子レンズ系への影響が大きいため、世界でもほとんど報告例がない。しかし近年、磁気デバイスの高性能化あるいは多様化のため、温度や外部磁界による磁区の変化様式の観察、また残留磁化を有する材料、例えば永久磁石の磁区構造観察は重要度を増している。そこで今回、500℃に加熱した試料、また表面から80 kA/mの磁界が漏洩する試料において、スピンSEM観察を可能にする

試料加熱・漏洩磁界シールド機構を開発した。

ここでは、スピનSEMによるその場磁区観察技術と観察例について述べる。

## 2. 試料加熱・漏洩磁界シールド機構付き試料ステージ

試料加熱・漏洩磁界シールド機構を搭載した試料ホルダの構造を説明する。試料加熱用ヒータはPBN (Pyrolytic Boron Nitride) 製セラミックヒータを用いた。試料ホルダに配置された各種部品の位置関係について、試料ホルダの上面図として図2 (a) を、横断面図として図2 (b) をそれぞれ示す。ここでは述べないが、試料に磁界を印加する機構も同時に開発しており、試料直下には磁界印加用磁石を配置している。そのスペースを避けて約10 mm離れた位置にヒータを配置している。試料は熱伝播(ば)用銅板を通じてヒータからの熱を受け取る構造にしている。その一方、磁界印加用磁石は熱し過ぎると性能が劣化するので、ヒータと磁石の間に熱遮断板(ステンレス)を配置している。このように、高温になる部分を必要最低限にして

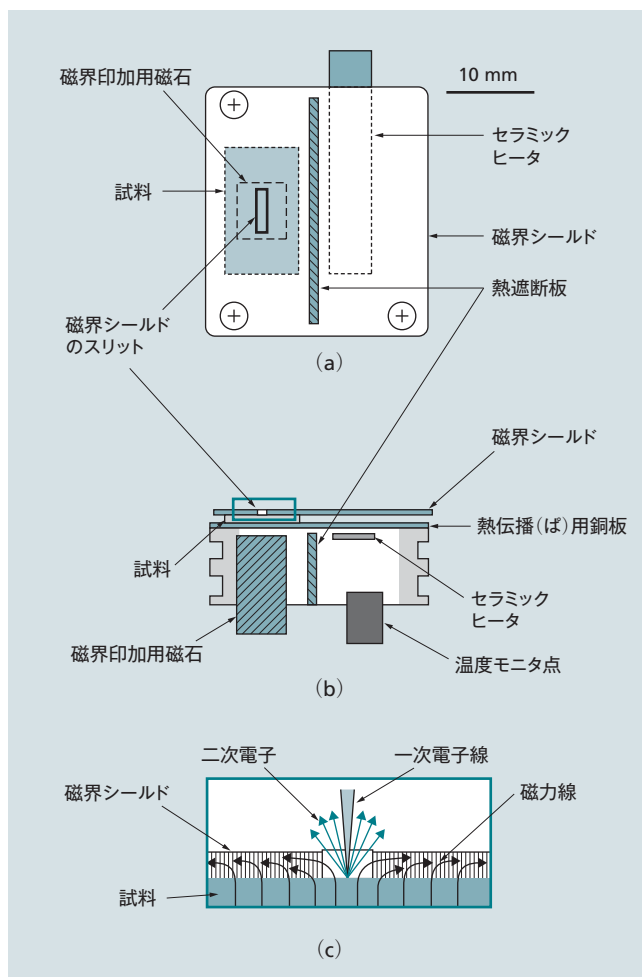


図2 | 試料ホルダの概要

試料加熱・残留磁化試料観察機構における、試料、ヒータ、磁界印加用磁石と磁界シールドの位置関係を示した。試料ホルダの上面図を(a)に、横断面図を(b)に示す。また、磁界シールドが試料からの漏洩(えい)磁界を遮断する様子を、(b)の青色枠内拡大図として(c)に示す。

試料よりも下側に配置することにより、試料を加熱した際の真空度の悪化や試料上側に配置されている電子レンズ系への悪影響を抑制することができる。

残留磁化を有する試料観察のためには、漏洩磁界を遮断して一次電子線や二次電子への影響を軽減できる磁界シールド機構が必要となる。そこで、電子軌道の三次元シミュレーションを用いて、磁界シールド機構を設計・開発した。この磁界シールドは0.5 mm厚のパーマロイ板を、試料ホルダ上面を覆い隠すサイズに切り出したもので、幅1 mm、長さ5 mm程度の細長いスリットを開け、そのスリットが試料の観察面に位置するようにセットする。スリットを通してプローブ電子線は試料観察面に照射され、二次電子も検出器に取り込まれる。その際、試料からの漏洩磁界は図2 (c) に示すように磁界シールドで遮断されるため、広範囲に浮遊せず、一次電子線や二次電子への影響は大幅に軽減される。製作後、実際に漏洩磁界を有する試料を用いて、シールド機構が十分に機能することを確認した。

## 3. 試料加熱実験

試料加熱機構を用いて、Co(コバルト)単結晶(0001)面の高温磁区観察を試みた。室温から500°Cまで、100°C刻みで撮影した結果を図3に示す。

この試料は、試料面垂直方向〔(0001)軸方向〕に磁化が向きやすい容易軸を持っているが、試料表面においては静磁エネルギーのためにほとんど面内方向に磁化は傾き、還

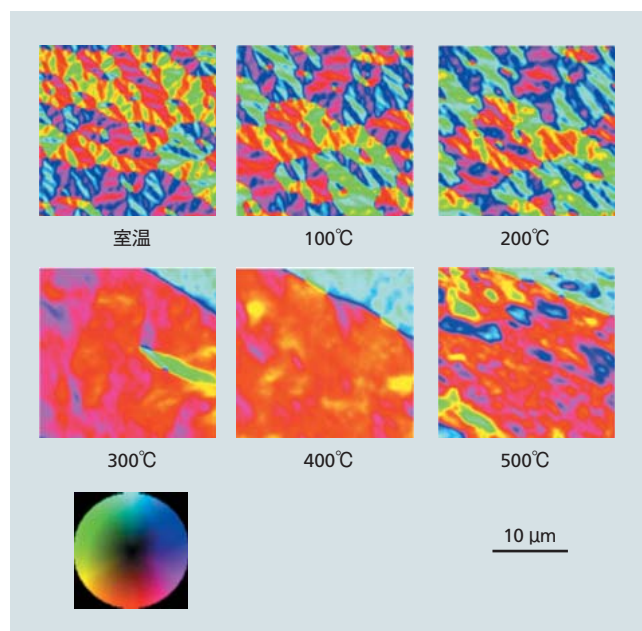


図3 | スピンSEMで観察したCo単結晶(0001)の高温での磁区変化

磁化ベクトルを色で表示している(左下端のカラーサークル参照)。200°Cから300°C、400°Cから500°Cへの変化において、磁区構造に大きな変化が見られるが、これはそれぞれ該当温度で発生する磁気異方性の変化、結晶構造の変化に対応していると考えられる。

流磁区的な構造をとることが知られている。実際に、試料面垂直成分は小さいことを確認したので、同図では試料面内での磁化方向を計算し、カラー表示している。

室温においては、結晶構造の対称性を反映した2~3 μmサイズの磁区構造が観察されている。温度を上げていくと、200°Cまでは磁区形状の変化は比較的小さいが、300°Cでは細かな磁区が一斉に消失し、10 μm以上の大きな磁区構造をとるようになる。その後400°Cから500°Cで、大きな磁区の中に2~3 μmの小さな磁区が生じているのが見られる。

Co単結晶は、室温で(0001)軸方向であった磁化容易軸が、200°C近辺の相転移点より高温では(0001)面内方向に変化することが知られている。そのため相転移点以下では、試料内部においては磁化が(0001)軸方向に向いているものの、試料表面では静磁エネルギーのために細かい還流磁区的な構造をとっている。一方、相転移点よりも高温では(0001)面内方向、すなわち試料面内方向が容易軸となり、試料内部でも表面でも試料面内方向を向いた大きな安定した磁区になる。今回の実験では、その相転移が200°Cから300°Cの間で見られた大きな磁区変化の原因と思われる。また、Co単結晶は450°C近辺でhcp (Hexagonal Close-packed) 構造からfcc (Face-centered Cubic) 構造に転移することが知られており、二つめの磁区構造変化はそれを反映していると考えられる。

このように、Co(0001)面の磁区をスピンのSEMで観察することにより、過去に報告されている相変化に対応した磁区の変化を直接観察することができ、今回開発した試料加熱機構が正常に動作していることが確認できた。この技術は、高温での磁気特性が注目される磁気デバイス観察に今後適用していく予定である。例えば、ハイブリッド自動車に搭載するモータ材である強力磁石NdFeBは高温でのさらなる保磁力(磁化を保つ力)の増強が求められており、高温での磁区変化の評価が求められている。

#### 4. 残留磁化状態の観察例

次に、残留磁化を有する永久磁石を観察した例を紹介する<sup>4)</sup>。試料は異方性微結晶NdFeB磁石で、以下に述べる順序で磁区変化と結晶粒形状の関係を評価した。まず磁化がゼロである熱消磁状態におけるスピンのSEM像(磁区像と表面形状像)を取得した。そして試料を一度取り出し、別装置である磁界印加装置によって試料に80 kA/mの磁界を印加した後、磁界をゼロに戻して残留磁化状態をつくり、再びスピンのSEM装置に戻してデータを取得した。その印加磁界を順次80 kA/mずつ増加させ、磁化が完全に一方向に向くまでこの操作を繰り返し、変化していく残留

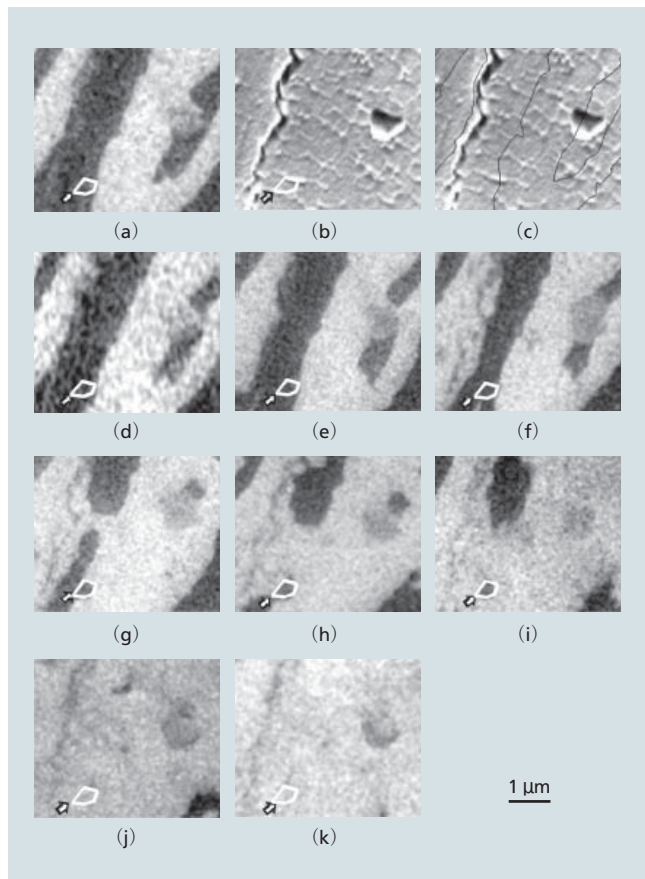


図4 | 熱消磁状態から、印加磁界640 kA/mまでの残留磁化状態を観察したスピンのSEM像(磁区像と形状像)

熱消磁状態の磁区像を(a)、熱消磁状態で撮影した形状像を(b)、(b)に磁区境界部(磁壁)位置を重ねたものを(c)、印加磁界が80 kA/mを(d)、160 kA/mを(e)、240 kA/mを(f)、320 kA/mを(g)、400 kA/mを(h)、480 kA/mを(i)、560 kA/mを(j)、640 kA/mにおける残留磁化状態の磁区像を(k)にそれぞれ示している。

磁区像において磁化の向きは、白い領域が画像において上向き、黒い領域が下向きの磁化を示す。各残留磁化状態の像は視野が少しずれているが、同一の結晶粒の位置を白線で囲み矢印で示している。

磁化状態の磁区を観察した。

結果の一例を図4(a)~(k)に示す。各結晶粒の磁化容易軸は画像の縦方向になるように配向しており、(a)に示す熱消磁状態での磁区像において、白黒の柱状構造が磁区である。白い領域が上向き、黒い領域が下向きの磁化を示し、異物など磁化を持たない領域はグレーで表示される。この視野においては、白黒の面積が同程度になっている。

(b)は(a)と同じ領域の形状像であるが、画像左側に縦方向にクラックが走っており、また右側には大きさ1 μm弱の異物が観察されている。それ以外の領域では0.3 μmから0.5 μm程度の大きさの粒状構造が、薄いコントラストで観察されているが、これがこの磁石を構成する結晶粒である。十分なコントラストが得られていない部分もあり、すべての結晶粒が分解されているわけではない。

この形状像と磁区境界部(磁壁)の関係を調べるために、(a)から得られた磁壁位置を黒線として(b)に重ねたものが(c)である。これを見ると、結晶粒境界部と磁壁は、一致

している部分もあるがそうではない箇所もある。磁壁はその面積を小さくすることを優先して直線的に走っているの、結晶粒内を横切る箇所がある。この場合は、一つの粒子内に二方向の磁化を持つ多磁区粒子になっていることになる。スピンSEMを用いると、このように形状と磁化を融合した議論ができるため、結晶粒形状と磁壁位置の関係を解析することが可能である。

(d)～(k)に、画像において上方向に順次磁界を印加して作った残留磁化状態の磁区像を示す。磁界を印加する際には一度試料を取り出さざるを得ないが、形状像(b)で示したクラックや異物を目印にしてほぼ同じ視野を観察することができた。(b)の熱消磁状態の形状像において左下の一つの結晶粒の位置を白線で囲み矢印で示しているが、この結晶粒の位置を各磁区像においても示し、視野の関係がわかるようにしている。磁区形状を見てみると、熱消磁状態(a)から240 kA/m(f)までは大きな変化はないが、徐々に黒い部分が細くなり、白い領域が増えている。320 kA/mの残留磁化状態(g)ではそれまで存在していた大きな黒い磁区が小さく分裂する傾向が見られ始め、400 kA/m(h)から560 kA/m(j)において急速に黒い磁区は小さくなり、消滅していく様子が観察されている。

またその過程において、熱消磁状態(a)では直線的で滑らかであった磁壁が、320 kA/m以上では凹凸のあるかなり複雑な形状に変化している様子がうかがえる。この凹凸構造の大きさは0.3～0.5  $\mu\text{m}$ 程度で結晶粒径と同レベルであり、これは結晶粒単位で固有の磁化方向が決まることを示唆している。例えば各磁区像左下に位置のマーカとして記している結晶粒は、熱消磁状態(a)から240 kA/m(f)の残留磁化状態においては大きな黒い磁区の一部であった。320 kA/m(g)では周辺の磁化が反転したがこの結晶粒は磁化方向を維持したので、その結晶粒界部が黒い磁区から突出した形となり、磁壁の凹凸構造を形成している。400 kA/m(h)ではさらに周辺磁区の反転が進み、480 kA/m(i)においては、完全に孤立した磁区になっている。そして560 kA/m(j)でこの結晶粒の磁化も反転している。

以上の結果より、この一連の磁化の維持または反転が結晶粒単位で行われており、多磁区構造を示唆する熱消磁状態とは異なっていることが確認された。また、結晶粒ごとに反転する磁界が異なっており、このようなデータから、

この磁石の保磁力向上への指針へつなげていくことが今後の検討課題である。

今回の実験では、試料の残留磁化は順次増加していき、最終的には0.2 T以上になっていることを確認している。試料表面上の漏洩磁界も心配されるところであったが、前述のような対策をしているために、その影響を受けない磁区像を取得することができた。

なお、この内容は日立金属株式会社NEOMAXカンパニーとの共同研究より得られたものである。

## 5. おわりに

ここでは、スピンSEMによるその場磁区観察技術と観察例について述べた。

スピンSEMは開発されてから30年近くが経つが、現在もその発展は続いている。ここでは磁区の変化を調べる観察技術に関して報告したが、さらなる高分解能化を進めて、NdFeB磁石の粒界部観察などの要望に対応する予定である。また、検出器の感度も向上させるなど、顕微鏡技術の改善を今後も続けながら、微視的解析による磁気デバイスの性能向上への貢献を推進していきたい。

## 参考文献

- 1) K. Koike, et al. : Scanning Electron Microscope Observation of Magnetic Domains Using Spin-Polarized Secondary Electrons, Japanese Journal of Applied Physics. Pt.2, Letters. 23, L187-188 (1984.3)
- 2) H. Matsuyama, et al. : Twenty-nm Resolution Spin-polarized Scanning Electron Microscope, Journal of Electron Microscopy, 43, 157-163 (1994.6)
- 3) T. Kohashi, et al. : High-resolution spin-polarized scanning electron microscopy, Journal of Electron Microscopy, 59, 43-52 (2010.2)
- 4) T. Kohashi, et al. : Analysis of Magnetization Mechanism for NdFeB Magnet Using Spin-Polarized Scanning Electron Microscopy (Spin SEM), Journal of the Magnetics Society of Japan, 33, 374-378 (2009.9)

## 執筆者紹介



孝橋 照生

1991年日立製作所入社、中央研究所 ライフサイエンス研究センター 高度計測センター 所属  
現在、スピン偏極電子線応用技術に従事  
理学博士  
日本金属学会会員、日本磁気学会会員、日本顕微鏡学会会員



薮 久実

1994年日立製作所入社、中央研究所 ライフサイエンス研究センター 高度計測センター 所属  
現在、オージェ電子顕微鏡、スピン偏極走査電子顕微鏡による表面分析に従事  
理学博士  
日本表面科学学会会員、日本物理学会会員、応用物理学会会員