

平成 30 年 9 月 12 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H02244

研究課題名(和文)放射光によるナノ磁化ダイナミクス可視化科学の構築

研究課題名(英文) Study of visualization of nano-magnetic dynamics and the development of the experimental techniques using synchrotron radiation

研究代表者

中村 哲也 (Nakamura, Tetsuya)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主席研究員

研究者番号：70311355

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、放射光ナノ集光ビームによるX線磁気円二色性(XMCD)測定技術の開発を行った。Co/Ni多層膜を試料とした時分割測定により、約100 nmの微小領域に対する磁化ダイナミクスをXMCD信号変化として検出することに成功した。また、さらに高度なナノ磁化検出技術への挑戦として、軟X線ナノビーム走査プローブ顕微鏡(SR-SPM)を開発した。放射光SPMの励起光源として軟X線集光ビーム生成し、SPM探針直下の試料位置に照射する特徴を有する。従来技術に比べ、SPM探針直下に約1000倍の密度の軟X線ビームを照射可能である。本装置を用い、パーマロイ磁気ドットのXMCD観察に成功した。

研究成果の概要(英文)：We have studied the synchrotron X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) measurement techniques using the nano-focused X-ray beam and the application to magnetic thin films. The time resolved XMCD signals have been successfully observed for the local area of about 100 nm in a Co/Pt multilayered film, where the applied magnetic fields were generated and synchronized with the pulsed X-rays. As a further advanced technical challenge, we have developed a scanning probe microscope (SPM) measurement technique combined with the synchrotron soft X-rays, which is so called SR-SPM. In the SR-SPM apparatus equipped with an X-ray focusing unit using a Fresnel zone plate, the higher density soft X-ray beam of about 1000 times compared to the previous studies irradiates the sample surface just below the SPM needle. XMCD signals from permalloy dots of the magnetite has been successfully recorded using the SR-SPM system with the special resolution of about 70 nm.

研究分野：放射光磁気解析

キーワード：X線磁気円二色性 放射光 軟X線 スピントロニクス STM

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクス先端機能性材料では、材料を構成する物質の構造・物性をナノスケールで制御し、目的の機能を引き出すことを特徴とする。特に、ナノサイズの磁性体に誘起される磁化ダイナミクスの制御により、革新的な機能・性能を実現している点が注目される。この様子を実験的に観察することが出来れば、動作中の磁化分布変化に起因する動作損失や励起モードの状況を特定し、所望の機能・性能を有するスピンデバイスの開発が加速されると期待される。

2. 研究の目的

本研究は、軟X線ナノビームを用いたX線磁気円二色性を磁化検出原理として、スピントロニクス材料の磁化をピンポイント、かつ、時分割で計測する技術を開発し、各種スピントロニクス素子磁化挙動を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、軟X線ナノビームによるGHz帯スピンドイナミクス測定技術の開発、および、軟X線ナノビーム走査プローブ顕微鏡(SR-SPM)の開発にフォーカスした研究を実施した。

4. 研究成果

軟X線ナノビームによるGHz帯スピンドイナミクス測定技術の開発

・スピントロニクス素子の励起・反転ダイナミクスの理解のためには、GHz帯の磁化の歳差運動周期程度の領域での観測が必要である。今回実験を行ったSPring-8においては、放射光が幅約50 ps、繰り返し周波数200 kHz~20 MHz程度のパルス状で発生されている。このことを利用し、放射光と励起源(磁場・電圧・電流)のタイミングを同期させることで、GHz帯におけるスピントロニクス素子のポンプ=プローブ法によるナノ集光時間分解計測技術の確立を目指した。本課題では、主に励起源として高周波磁場を用い、ナノ磁性体の大振幅磁場下での歳差運動の可視化に取り組んだ。軟X線を用いたXMCD計測はSPring-8のBL25SUにて行った。微細加工により作製した試料を、高周波線路を形成したプリント基板にマウントし、Alワイヤで接続した。プリント基板はSMAコネクタおよび長さ1 mの非磁性高周波ケーブルにより真空チャンバー外に接続した。試料には、幅5 μm、厚さ100 nmのAu高周波線路上に作製した直径5 μmのCo/Pt多層膜ドットを用いた。Co/Pt多層膜の下地膜の一部を電極状に残し、全電子収量法の検出電極として利用した。図1にSEM像を示す。ドット位置では、高周波電流により膜面内方向の高周波磁場が発生する。試料をAlワイヤで接続し、プリント基板のSMAコネクタ間の透過特性を計測したところ、4 GHz以下の周波数領域での損失は

2 dB以下に抑えられていた。SPring-8で発生する放射光パルスの幅は約50 psと見積もられており、時間分解測定のために十分な高周波特性が実現できることが分かった。また、真空チャンバー内に設置した磁場を印加しても高周波特性に大きな変化は見られない。

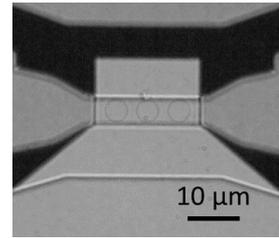


図1 Co/Pt多層膜ドットのSEM像

・ナノ磁性体を対象としたXMCD計測においては、SiNメンブレン上に形成した試料で透過法による計測が行われることが多かった。しかしながら、この手法ではメンブレンを用いることで試料作製プロセス大きな制限が生まれる。そこで本研究では、MCDの検出に、試料作製プロセスにこれらの制限がない全電子収量法およびコンバージョン型の全電子収量法を採用し、MCD検出を行った。MCD像の計測は、フレネルゾーンプレート(FZP)により直径約100 nmに集光したX線を試料表面を走査して行った。また、コンバージョン型の全電子収量法は、回折次数制限絞(OSA)に流れる電流を検出して測定した。周波数3 GHzの高周波電流を試料に印加した状態でCo L₃端の吸収像およびMCD像を計測した。図2に全電子収量法で計測した像を、図3にコンバージョン型の全電子収量法で計測した像をそれぞれ示す。



図2 全電子収量法により計測したCo L₃吸収端の(a)吸収像と(b)MCD像。

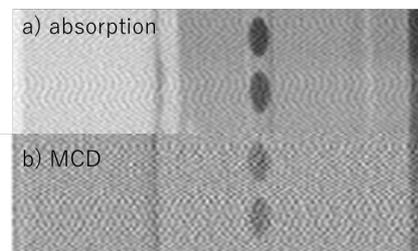


図3 コンバージョン型の全電子収量法により計測したCo L₃吸収端の(a)吸収像と(b)MCD像。

図3の測定では、試料をX線の入射方向に対

して約 45° 傾けているため、ドットが縦方向に伸びた長円となって見えている。図 2、図 3 いずれでも、Co の存在するドット部にのみ明瞭な MCD 信号が検出されている。また、この二つの測定でのコントラストの反転は測定される電流の向きへの反転に対応している。図 4 に、高周波磁場の有無による MCD 信号の直流磁場依存性を示す。直流磁場は膜面に垂直方向に印加し、測定は全電子収量法で行った。外部磁場が 2 kOe 近傍に、高周波磁場により励起された強磁性共鳴に対応するディップがみられている。この結果は、異常 Hall 効果による電氣的測定の結果ともよく一致し、全電子収量法での高周波磁場により励起された磁性体の MCD 測定が可能であることを示している。コンバージョン型全電子収量法においては、数 mA の定常電流を印加したデバイスでも MCD 信号が検出できることが確認できており、電流印加型のスピントロニクスデバイスへも応用が可能であることを示した。

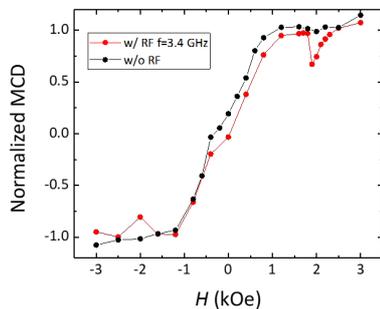


図 4 高周波磁場の有無による MCD 信号の直流磁場依存性の変化。

・ポンプ=プローブ法による時間分解測定の実現のためには、外部励起源(ポンプ)とプローブ光の同期が不可欠である。そこで、放射光リングからの基準クロック(約 508 MHz)を分周して高周波信号発生器の基準信号(約 42 MHz)を生成し、放射光リングの時間的な揺らぎも含めて高周波機器と同期した。これらの計測は調整事項が多岐にわたるため、超高真空が不要な硬 X 線を用いて試行した。実験は SPring-8 の BL39XU のナノ集光設備を用いて行った。試料は前項と同一基板上に作製した Co/Pt 多層膜ドットを用いた。試料を X 線の入射方向から 60° 傾けたため、磁化の面内成分も MCD 信号として検出される。X 線は KB ミラーを用いて約 100 × 200 nm² に集光してドット中央に照射し、蛍光法により信号を検出した。図 5 に、周波数 2.5 GHz の高周波磁場を印加して測定した Pt L₃ 吸収端の MCD 信号の時間依存性を示す。印加した周波数と一致した明瞭な振動が観測されている。この信号の振動は磁化の歳差運動に対応している。これまでに 3 GHz までの明瞭な MCD 信号の振動が測定できており、X 線のバンチ幅の 50 ps と同程度の時間分解能での計測が可能であることを示した。

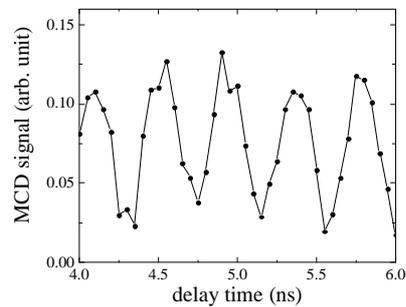


図 5 周波数 2.5 GHz の高周波磁場を印加して測定した Pt L₃ 吸収端の MCD 信号の時間依存性。

軟 X 線ナノビーム走査プローブ顕微鏡 (SR-SPM) の開発

本研究では、ナノ XMCD 装置の空間分解能を向上させることを目的に「ナノ XMCD/走査プローブ顕微鏡複合装置の開発」を実施した。本装置は、軟 X 線ナノビームを生成するため装置ならびに、軟 X 線ナノビームを照射可能な「光てこ方式非接触原子間力顕微鏡」から構成される。

・図 6 に本研究で開発した軟 X 線ナノビームを照射可能な走査プローブ顕微鏡の概要図を示す。本装置は、試料表面から 5° もしくは 30° の角度で軟 X 線ナノビームが照射可能となっている。また、走査プローブ顕微鏡における探針振動の検出には、真空チャンバ外部にレーザー光源をもつ光てこ方式を採用しており、カンチレバー背面に照射されたレーザー光の光路の変化を四分割フォトダイオードを通して検出する。真空チャンバ外に光源を設置することにより、真空チャンバのベッキングに伴うレーザー光源の劣化を防いでいる。

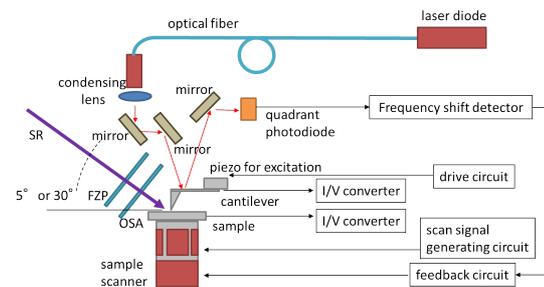


図 6 本研究で開発した走査プローブ顕微鏡のプロックダイアグラム。

図 7 に走査プローブ顕微鏡ユニットの概要図を示す。本ユニットは、上部デッキ、下部デッキの二段のデッキから構成されている。上部デッキには、走査プローブ顕微鏡用の装置が配置されている。走査プローブ顕微鏡の探針が放射光の光軸付近に来るよう設計されている。走査プローブ顕微鏡における走査は、チューブスキャナを用い試料を走査することで実現している。また、探針-試料間距離

の制御にもチューブスキャナを用いている。下部デッキには、軟X線ナノビーム用の装置が配置されている。軟X線ナノビームは、フレネルゾーンプレート(FZP)ならびに回折次数制限絞り(OSA)を用いて生成する。これらは、FZP用、OSA用のそれぞれのホルダが取り付けられたx-y-z三軸ステージを用いることで位置を調整することが可能となっている。上部デッキには、FZPとOSA用のViaホールが開けられており、このViaホールを通してFZP、OSAを放射光の光軸上に移動させることが可能となっている。

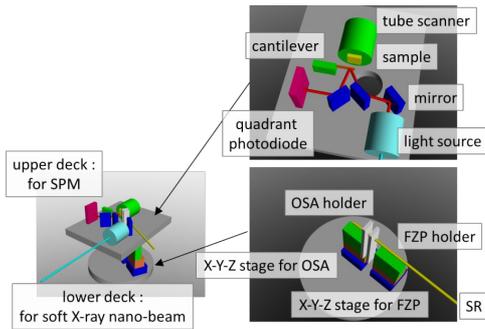


図7 走査プローブ顕微鏡ユニットの概要図

・システムは、Windows PC、LabVIEW PXI、PXI-7852Rにより構成されており、このシステムがHF2LIロックインアンプならびにI/V変換器からの信号を受け、 piezodrivaを制御する。探針・試料間の位置制御など時間的確定性ならびに高速応答が必要な制御はFPGAが担う。また、全システムはテキストコマンドで制御可能なインターフェースを有しており、Python等のインタープリタ言語を用いた全自動計測が可能となっている。

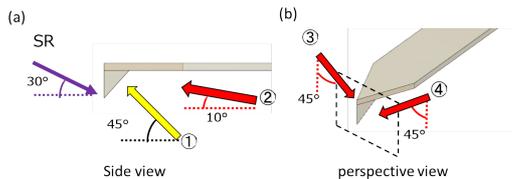


図8 軟X線ナノビーム用走査プローブ顕微鏡探針作製プロセスの概要図。(a)に断面図を、(b)に鳥瞰図を示す。

・軟X線を照射した際の試料または探針に流れる電流を検出するため、軟X線ナノビーム用走査プローブ顕微鏡用探針作製プロセスを開発した。このとき探針先端付近の情報を優先的に取得するため、探針は先端のみに導電性薄膜が露出していることが好ましい。図8に、軟X線ナノビーム用走査プローブ顕微鏡探針作製プロセスの概要図を示す。本研究では、探針にオリンパス製のカンチレバーを用いた。このカンチレバーに対して、イオンビームスパッタリング装置を用い、図8(a)中の①で示した向きに電極用のCr(3nm)/Au(30nm)/Cr(3nm)を成膜した。その後、図8中の②~④に示した向きにシールド用の

SiO₂(30nm)を成膜した。このプロセスを用いることで、探針先端近傍のみに電極を露出させた。

・軟X線ナノビームによる試料状態の変化を走査プローブ顕微鏡の探針を通して取得するには、軟X線ナノビームを探針と試料とのギャップに照射する必要がある。そのため、軟X線の照射位置の調整を実施した。図9に、放射光の光源側から撮影した探針と試料の写真を示す。

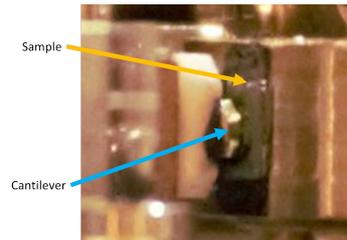


図9 光源側からみたカンチレバーと試料。

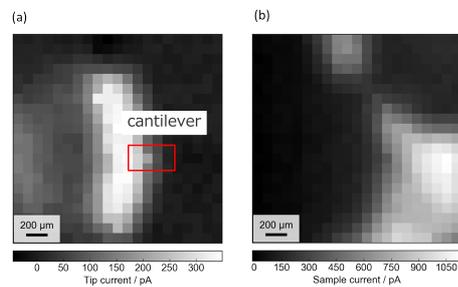


図10 真空チャンバ走査により取得した(a)探針電流ならびに(b)試料電流像。

また、図10に真空チャンバを二次元走査することにより得られた探針電流像(図10(a))ならびに試料電流像(図10(b))を示す。図9と図10(a)とを比較することにより、探針電流像を用いることで約50μmの精度で探針を放射光の光軸へアライメントできる。また、図10(a)と図10(b)とを比較することにより、探針に放射光が照射された場合、試料電流が減少することが分かる。これは、探針により放射光が遮蔽されたことを示している。本手法を用いて探針を放射光の光軸付近に移動させた後に、FZPを走査することで、ナノビームを探針先端へとアライメントした。

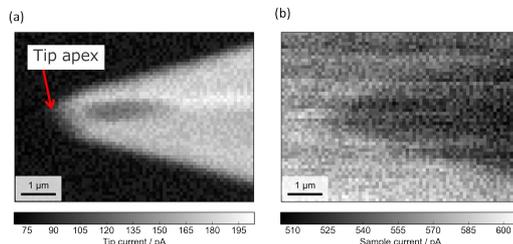


図11 FZPを走査することにより取得した(a)探針電流ならびに(b)試料電流像。

図11にFZPを走査した際の探針電流像(図

11(a)ならびに、試料電流像(図 11(b))を示す。図 11(a)では、探針先端形状が画像化されていることがわかる。本手法を用いることで、数 100 nm の精度で軟 X 線ナノビームを探針先端へアライメントすることが可能となった。

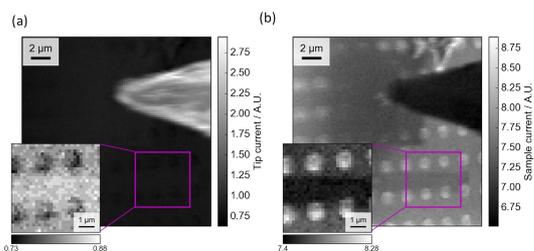


図 12 FZP 走査による磁性ドットならびに磁気力探針の可視化。(a)探針電流像、(b)試料電流像。

・続いて、探針電流、試料電流を用いた磁性ドットの磁化計測を行った。軟 X 線の光子エネルギーは Co の L_3 エッジと一致する様設定した。図 12(a)に FZP を走査した際の試料ならびに探針の探針電流像を、図 12(b)に同時に取得した試料電流像を示す。いずれの像においても探針ならびに磁性ドットが可視化できていることが確認された。さらに、走査プローブ顕微鏡のチューブスキャナを用いて試料を走査することにより、磁性ドットを可視化した。

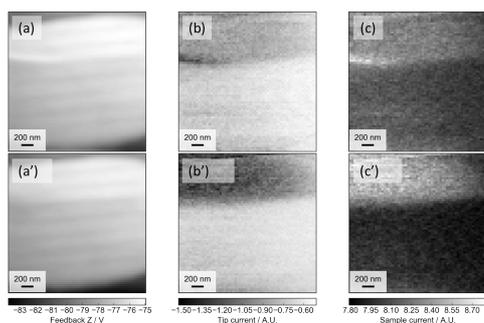


図 13 探針試料間に働く相互作用を一定とし、取得した(a, a')表面凹凸像、(b, b')探針電流像、(c, c')試料電流像。(a-c)と(a'-c')は、各異なるヘリシティの軟 X 線を用いた。

図 13(a)にその際の表面凹凸像を、図 13(b)に探針電流像を、図 13(c)に試料電流像を示す。また、図 13(a'-c')には、軟 X 線のヘリシティを変更して取得した同様の像を示す。図 13(a)では、磁性ドットを可視化できていることがわかる。また、図 13(b)と図 13(b')ならびに図 13(c)と図 13(c')とを比較すると、軟 X 線のヘリシティにこの像は、試料の磁化状態を反映していると考えられる。これらの像の差分をとることで XMCD 像を得た。図 14 に本研究で得られた XMCD 像を示す。図 14 の結果より、70 nm 程度の空間分解能で XMCD 信号を可視化できることが明らかとなった。本研究では、長軸約 200 nm、短軸約 100 nm のスポットサイズの軟 X 線ナノ

ビームを用いた。今回の実験により得られた像は、軟 X 線ナノビームのスポットサイズより高い解像度で取得されており、走査プローブ顕微鏡による高空間分解能化が達成された。

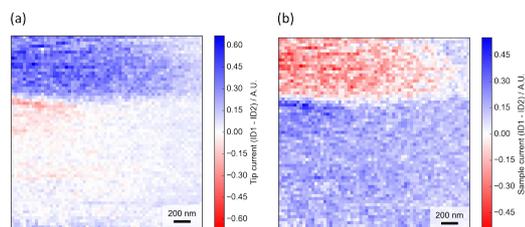


図 14 探針試料間に働く相互作用を一定とし、取得した XMCD 像。(a)は探針電流を、(b)は試料電流を用いて取得した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 2 件)

N. Kikuchi, H. Osawa, M. Suzuki, and O. Kitakami, Time and Spatially Resolved Hard X-Ray MCD Measurement on a Co/Pt Multilayer Dot Excited by Pulsed RF Field, IEEE Transactions on Magnetics, 査読有, 54, 2018, pp.6100106-1 ~ 6.

H. Nomura, N. Yoshioka, S. Miura, and R. Nakatani, Controlling operation timing and data flow direction between nanomagnet logic elements with spatially uniform clock fields, Applied Physics Express, 査読有, 10, 2017, 123004-1 ~ 4.

〔学会発表〕(計 15 件)

中村哲也, 放射光軟 X 線磁気円二色性によるスピントロニクス材料研究, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会(招待講演), 2016.

吉岡直倫, 野村光, 中谷亮一, 磁性量子セルラオートマタに基づく双方向シフトレジスタ, 第 40 回 日本磁気学会学術講演会, 2016.

菊池伸明, GHz 帯のマイクロ波磁場印加下での Co/Pt 多層膜ドットにおけるナノ XMCD, 第 3 回 実用スピントロニクス新分野創成研究会, 2016.

野村光, 若狭凌生, 中谷亮一, 菊池伸明, 岡本聡, 小谷佳範, 豊木研太郎, 中村哲也, 軟 X 線ナノビーム XMCD/走査プローブ顕微鏡複合装置の開発, 第 30 回日本放射光学学会年会 放射光科学合同シンポジウム, 2017.

菊池伸明, Hモードを用いた時間分解 XMCD-FMR 計測, 第4回 実用スピントロニクス新分野創成研究会, 2017.

菊池伸明, 時間分解 XMCD による磁化ダイナミクス計測, 第5回 実用スピントロニクス新分野創成研究会, 2017.

菊池伸明, 元素・空間・時間分解 MCD 測定による強磁性共鳴測定, 東北大学金属材料研究所共同利用ワークショップ(招待講演), 2017.

菊池伸明, 時間・空間分解 XMCD による強磁性共鳴測定, 日本物理学会秋季大会(招待講演), 2017.

N. Kikuchi, H. Osawa, M. Suzuki, O. Kitakami, Time and spatial resolved XMCD-FMR measurement on a Co/Pt multilayer dot excited by rf magnetic field in GHz regime, The Magnetic recording conference (招待講演)(国際学会), 2017.

T. Nakamura, XMCD Studies of Magnetic Materials with High Spatial Resolution and High Magnetic Fields, IUMRS-ICA 2017 (招待講演)(国際学会), 2017.

野村光, 吉岡直倫, 中谷亮一, 磁性シフトレジスタを用いたファンアウト素子, 第41回 日本磁気学会学術講演会, 2017.

佐村直樹, 若狭凌生, 中谷亮一, 菊池伸明, 岡本聡, 小谷佳範, 豊木研太郎, 中村哲也, Co/Pt 多層膜に対する軟X線照射下での走査型プローブ顕微鏡測定, 日本金属学会2017年秋期(第161回)講演大会, 2017.

N. Kikuchi, Y. Yomogita, D. Kanahara, S. Okamoto, O. Kitakami, T. Shimatsu, H. Osawa, Y. Kotani, K. Toyoki, M. Suzuki, T. Nakamura, Elementally resolved ferromagnetic resonance by X-ray magnetic circular dichroism on Co/Pt multilayer dots, Magnetism and Optics Research International Symposium(国際学会), 2018.

菊池伸明, XMCD でみるスピンの界面現象, 第6回 実用スピントロニクス新分野創成研究会, 2018.

N. Samura, H. Nomura, R. Nakatani, N. Kikuchi, S. Okamoto, Y. Kotani, K. Toyoki, T. Nakamura, Electrostatic force measurement on magnetic thin film under soft X-ray irradiation, Magnetism and Optics Research International Symposium (国際学会), 2018.

[図書](計 0件)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]
ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

中村 哲也 (Nakamura, Tetsuya)
高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主席研究員
研究者番号: 70311355

(2)研究分担者

小谷 佳範 (Kotani, Yoshinori)
高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員
研究者番号: 10596464

野村 光 (Nomura, Hikaru)
大阪大学・工学研究科・助教
研究者番号: 20506258

菊池 伸明 (Kikuchi, Nobuaki)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号: 80436170

岡本 聡 (Okamoto, Satoshi)
東北大学・多元物質科学研究所・准教授
研究者番号: 10292278

(3)研究協力者 なし