

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K20607

研究課題名（和文）新しい磁気光学効果の受光光学系自動最適化手法の開発

研究課題名（英文）Development of automatic optimization method for receiving optical system of new magneto-optical effect

研究代表者

菅原 健人（Sugawara, Kento）

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 放射光科学研究センター・技術員

研究者番号：80831304

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,100,000円

研究成果の概要（和文）：本課題ではX線磁気円偏光発光を用いた磁気光学顕微鏡の受光系の調整法の確立と、研究過程で開発した深さ分解測定技術について研究した。X線磁気円偏光発光はバルク敏感な磁気光学顕微鏡としての応用が期待されるが、受光系に利用する平行化光学系の調整手法に課題があった。平行化光学系の調整手法については、角度発散を最小とするために、平行化ミラーの反射X線の強度分布情報を用いた粗調整と角度発散の直接計測による微調整を組み合わせる手法を確立した。一方研究過程で、反射X線の角度分布と発光点空間分布が一対一に対応する事を確認し、この特性を利用して、深さ分解測定技術を開発し、実証実験および特許出願を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題における研究は従来にない数十 μm の深部の磁区まで計測可能な磁気光学顕微鏡の開発に関するものであり、実用化の課題となっていた受光系における平行化光学系の調整手法を確立したものである。これにより、電磁鋼板などの磁性材料において、絶縁被膜の付いた実材料においても、その深部磁化情報の計測が可能となった。また研究過程で開発した深さ分解測定技術を利用することで、表面情報と深部情報とを分離でき、従来の表面のみの観測では予想するしかなかった、深部の磁区の実測が可能となる。これはエネルギー損失の原因となる異常磁区の発生メカニズムを明らかにする手掛かりとなり、材料開発へのフィードバックが期待される。

研究成果の概要（英文）：We studied the establishment of an adjustment method for the light receiving system of a magnetic microscope using X-ray magnetic circularly polarized emission, and the depth-resolved measurement technology developed in the research process. X-ray magnetic circularly polarized emission is expected to be applied as a bulk-sensitive magnetic microscope, but there was a problem in the adjustment method of the light receiving system. As for the adjustment method of the light-receiving system, we established a method that combines coarse adjustment using the intensity distribution information of the reflected X-rays from the collimating mirror and fine adjustment by direct measurement of the angular divergence. On the other hand, during the research process, we developed depth-resolved measurement technology, conducted demonstration experiments, and applied for a patent.

研究分野：計測技術

キーワード：放射光X線 計測技術 レイトレース法 磁化測定 磁性体 蛍光X線 円偏光

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

私たちの身の回りには実に多くの磁性材料があふれている。磁性材料は永久磁石や磁気メモリ、鉄心等様々な形で存在し、それらは現代のスマートフォンを始めとした精密機器や電気自動車、発電機、変圧器等に組み込まれ、私たちの生活に無くてはならない材料の 1 つとなっている。また、これらの磁性材料の機能向上のために、高磁束密度化や保持力の増加、低鉄損化等の材料開発が日々されている。この材料開発において無くてはならないのが、開発した磁性材料の観測手法である。磁性体の磁化の観測手法としては、主に磁気光学カー効果(反射光の偏光の位相変化)やファラデー効果(透過光の直線偏光の偏光方向の変化)、磁気円二色性(左右円偏光の透過率の違い)の原理を用いたものが広く用いられている。一方で、これらの観測手法は材料の表面磁化しか観測ができなかったり、透過力が高くても磁性金属元素に対して感度が悪かったりと、材料深部の微細な磁区構造の解析には不向きな側面があった。そのため、バルク敏感な磁気光学顕微鏡の開発が求められてきた。

弊機構ではそのような観測の需要に答えるため、透過力の高い硬 X 線領域にて Fe 等の 3d 遷移金属に高感度な磁化観測手法についての研究がなされてきた。そして 2017 年に X 線磁気円偏光発光(XMCPE)と呼ばれる新たな磁気光学効果が発見された。XMCPE は「X 線を磁性体に照射した際、照射箇所磁化に応じた円偏光成分を有する蛍光 X 線が発生する」という効果である。そのため、発生した蛍光 X 線の円偏光を解析することで、発生個所の磁化を測定できる。特に硬 X 線で材料深部まで発光させ、その発光箇所からの円偏光の解析をすることで材料深部の磁化が測定でき、まさにバルク敏感な磁気光学顕微鏡としての応用が期待される。

一方でこの XMCPE の短所として、検出効率が極めて低いことが挙げられる。これは XMCPE が「発光」現象であるため、検出すべき X 線が全方向に広がる「発散光」に対して、硬 X 線領域では円偏光の解析装置が、光線の方向が揃った「平行光」を必要とすることに起因する。円偏光の解析装置は、移相子によって左右円偏光を縦横直線偏光に変換し、アナライザーによって特定の直線偏光の光のみを検出することで解析を行う。硬 X 線領域ではこの移相子とアナライザーに単結晶の回折現象を利用しているため、導入される X 線の向きが揃った「平行光」である必要がある。そのため、せっかく XMCPE が硬 X 線領域で Fe 等の 3d 遷移金属に対し高感度であっても、実際に円偏光解析に利用できるのは全「発散光」の内の極一部の「平行光」のみであるため、このままでは磁気光学顕微鏡としての実用化は不可能であった。

2. 研究の目的

XMCPE を用いたバルク敏感な磁気光学顕微鏡の実用化には、その検出効率の低さを解消する必要がある。そこで検出効率の低さの原因となっている「発散光」と「平行光」のミスマッチを解消するため、「発散光」を「平行光」に変換する平行化光学系の導入が検討された。検出効率を向上させるためには、できるだけ多くの「発散光」を「平行光」に変換する必要がある。そこで、大立体角の受光が可能で、蛍光 X 線のような比較的広いエネルギーバンド幅の光でも高い反射率を有する Montel 型多層膜ミラー(以下「Montel ミラー」という)を採用した。Montel ミラーは 2 枚の同型の放物線ミラーを直交配置し、高反射率を有するために多層膜がミラー表面に成膜されており、磁気光学顕微鏡の実用化レベルの検出効率が期待できる。一方で、この Montel ミラーを円偏光解析装置に組み込んだ際の影響、調整方法については未確立であった。本研究は Montel ミラーを円偏光解析装置に組み込んだ際の影響を調査し、調整手法を確立し、最終的に調整法を自動化することが目的である。

3. 研究の方法

Montel ミラーを円偏光解析装置に組み込んだ際の影響を調べるために、(1)数値計算によるシミュレーションと(2)実際に装置を組み立てての実験による実測を行う。

(1)数値計算によるシミュレーション

本研究では数値計算によるシミュレーションの具体的手法として、レイトレース法と呼ばれる手法を利用する。レイトレース法は光線 1 本毎の挙動をシミュレーションするものであり、それぞれの光線に位置や方向、エネルギー、位相等の情報を与えて、各光学素子での反射や屈折、回折等の結果をシミュレーションするものである。レイトレース法では発生から検出までを光線 1 本毎に調査することができるため、検出結果がどの光線のどの過程によるものなのかを特定するのに非常に優れた手法である。本研究ではこのレイトレース法によって、試料からの「発散光」である蛍光 X 線が Montel ミラーによってどのように反射し、円偏光解析装置である移相子やアナライザーにどのような作用を及ぼすかをシミュレーションする。

(2)実験による実測

大型放射光施設 SPring-8 に弊機構が設置している専用ビームライン BL11XU にて、Fe 試料及び Montel ミラーを設置し、反射光の測定実験を行う。試料への入射 X 線には、アンジュレーター光源にて発生した放射光を二結晶分光器で分光し、屈折レンズで集光したものを利用する。入射 X 線により、試料から発生した蛍光 X 線は、Montel ミラーで反射させ、2 次元検出器で反

射光を検出する。実験では Montel ミラーの配置等に対する反射光の応答を調べる。

4. 研究成果

(1) レイトレース法によるシミュレーション

Montel ミラーの理想配置での反射光の計算

まず Montel ミラーの理想配置における反射光の「平行光」としての性能を評価した。なお、使用する Montel ミラーは入射光に対し、2 回の反射で約 1.414° の反射角を有するため、その分傾斜させた状態を理想配置とした。試料への入射光サイズは縦横 $10\ \mu\text{m}$ 、エネルギーは $17.3\ \text{keV}$ 、入射角は 90° の条件で発光点および発散光を生成し、試料表面から Montel ミラーの設置方向のなす角は 70° とした。図 1(a) は横軸水平(H)方向、縦軸垂直(V)方向とした反射光の 2 次元強度分布、(b) は水平方向の角度分布(H')、垂直方向の角度分布(V')をそれぞれ示している。反射光の強度分布は菱形で、上部付近の強度が最も強く、左右、下部に向かうにつれて強度が減少していく様子が見て取れる。水平、垂直方向の角度分布のピーク幅についても $100\ \mu\text{rad}$ 以下であり、円偏光解析装置で利用するのに十分な平行性を有していることが分かった。

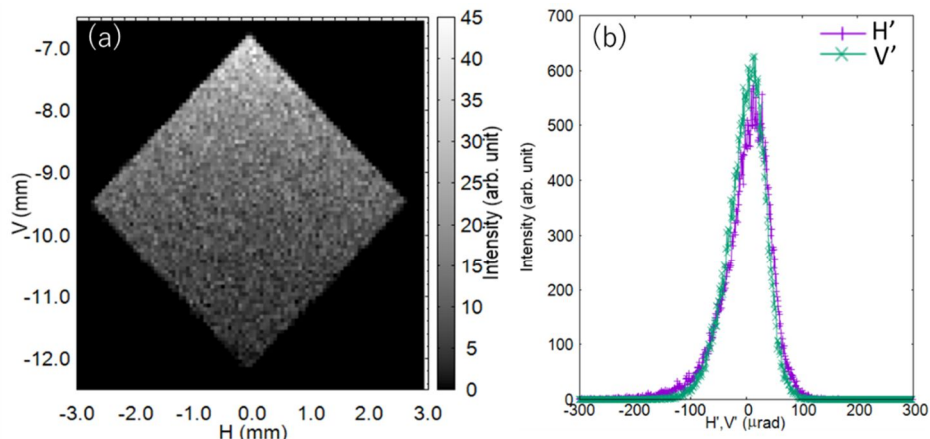


図1 (a) 理想配置における反射光の強度分布。Hは水平方向の座標、Vは垂直方向の座標。
(b) 理想配置における反射光の角度分布。H' は水平方向の傾き、V' は垂直方向の傾き。

Montel ミラーの理想配置からミスセッティングした場合の反射光の計算

次に Montel ミラーを理想配置からズラした場合に、反射光の強度分布や角度発散がどのように変化するかを調べた。図 2 は Montel ミラーから焦点方向に対して垂直な水平方向及び垂直方向にズラした場合の反射光の(a)強度分布と(b)角度分布の変化を示した図である。理想配置から離れると強度分布では形状やサイズが変化し、角度分布も平行度が悪化する様子が見て取れる。

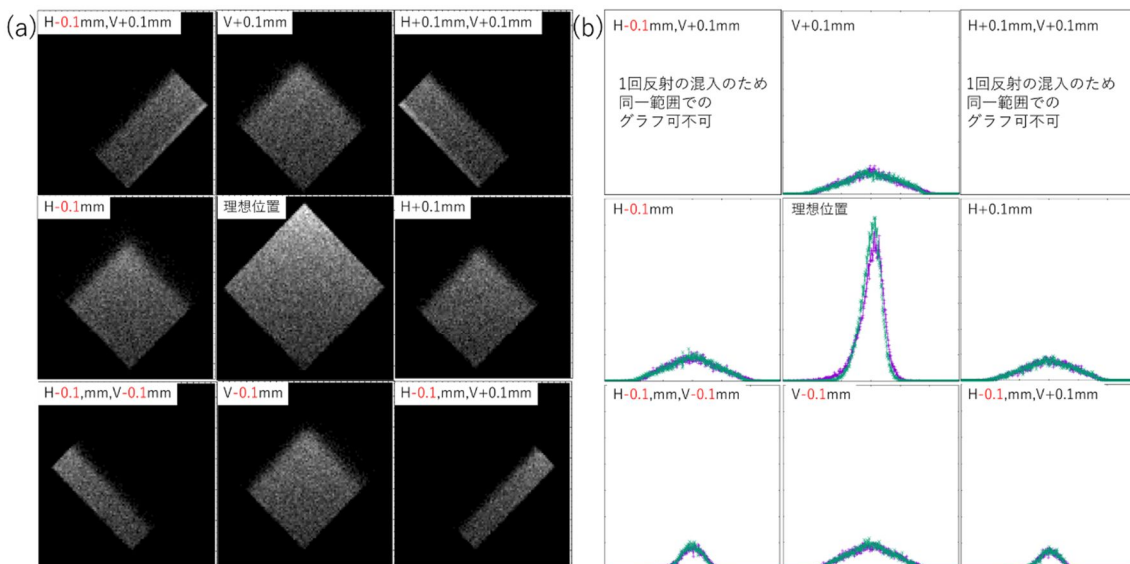


図2 (a) 理想配置および理想位置からズラした場合の反射光の強度分布。縦横コントラストは図1(a)と同様にしている。
(b) 理想配置および理想位置からズラした場合の反射光の角度分布。H' は水平方向の傾き、V' は垂直方向の傾き。
縦横幅は図1(b)と同様にしており、それぞれ原点は分布の平均値となるようにしている。

一方で図 3(a)に示すように、焦点距離方向の配置の変化に関しては、強度分布にはほぼ変化が見られないにもかかわらず、図 3(b)では角度分布は理想配置から離れるにしたがって平行度が悪化していることが見て取れる。このことから、焦点距離方向に対して垂直な水平方向や垂直方向の調整は強度分布変化の情報から理想位置への調整が可能と考えられるが、焦点距離方向

に関しては強度分布の変化が乏しく、調整のためのパラメータとしては不向きであることが分かった。

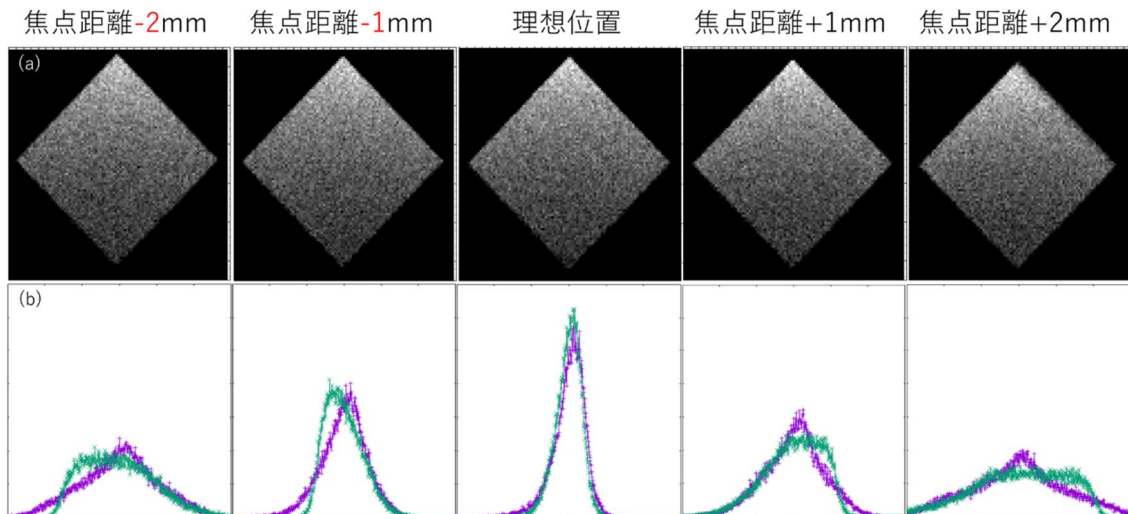


図3 (a)理想配置および理想位置から焦点距離方向にズラした場合の反射光の強度分布。縦横コントラストは図1(a)と同様にしている。(b)理想配置および理想位置から焦点距離方向にズラした場合の反射光の角度分布。 H' は水平方向の傾き、 V' は垂直方向の傾き。縦横幅は図1(b)と同様にしており、それぞれ横軸の原点は分布の平均値となるようにしている。

(2)シミュレーション結果を受けての調整方法の再検討（角度発散の実測評価）

(1)の結果から、反射光の強度分布では焦点距離方向の調整は困難であることが分かった。そこで、焦点距離方向に垂直な水平方向および垂直方向については強度分布を利用して調整を行い、焦点距離方向の調整や微調整については、反射光の角度発散を直接計測する2段階の調整法を用いることとした。角度発散は、図4(a)のような2つの分光結晶(Si(400))による評価装置で測定し、2つの分光結晶を同方向に同量 $\Delta\theta$ だけ回転させ、その回折強度を検出することで測定ができる。

実験は大型放射光施設 SPring-8 の弊機構専用ビームライン BL11XU にて実施した。入射 X 線のエネルギーは 17.3 keV、屈折レンズで集光したビームサイズは $7.4 \mu\text{m} \times 9.2 \mu\text{m}$ 、入射角は 90° 、Montel ミラーは試料表面から 60° の方向に設置、といった条件で実験した。2次元検出器で強度分布を見ながら Montel ミラーの位置を調整後、図4(a)の評価装置によって、反射光の角度発散のピーク強度が最大かつ、ピーク幅が最小になる Montel ミラー位置を特定した。結果として図4(b)に示すような最適位置と思われる Montel ミラー位置の同定に成功した。実測のピーク幅は $116 \mu\text{rad}$ であり、円偏光解析装置における円偏光の変換効率として 94.6% と、十分実用性のある平行光を作る事に成功した。またこの最適位置に調整した Montel ミラーを利用して、円偏光解析装置に組み込んで磁気光学顕微鏡を構築し、装置論文としてその成果を発表した。

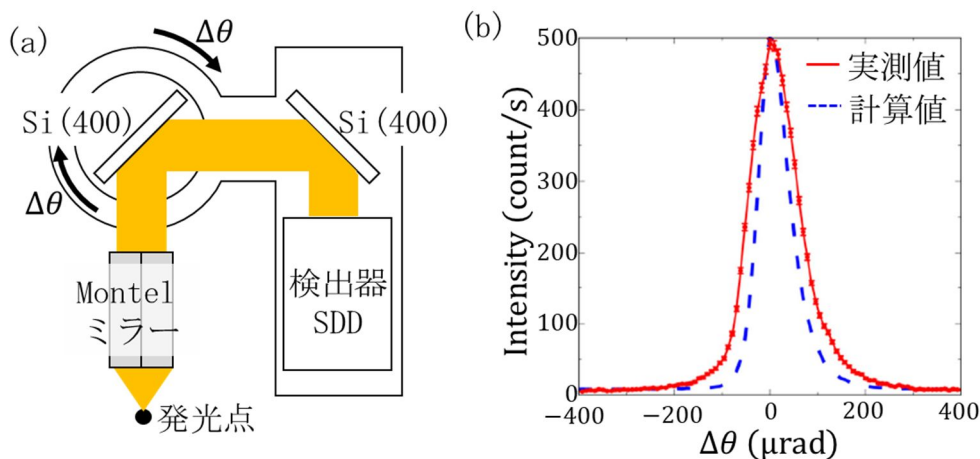


図4(a)Montelミラーの反射光の角度分布評価装置の模式図。

(b)測定結果とレイトレースによるシミュレーション結果

(3) 深さ分解測定の考案と実測

深さ分解測定の考案

レイトレース法の計算結果や実測から、角度発散の分布が発光点の分布に酷似していることが認識された。そこで、レイトレース法にて特定の角度の光線のみ検出した場合、発光点の分布の特定領域のみ選択的に検出できるかを検証した。計算に用いたレイアウトを図 5(a)に計算結果を(b)に示す。

角度発散評価装置の分光結晶には Si(400)の代わりに Ge(400)を用いた。これは Ge(400)の方が Si(400)に比べて回折強度が強いためである。図 5(b)は角度発散評価装置の角度 $\Delta\theta$ を固定し、試料を平行移動した際に検出される発光点の領域を図示しており、試料の移動量に応じて深い領域を選択的に検出できていることが分かる。これは特定の角度領域のみ検出するように受光系を制限すると、発光点の検出範囲が制限され空間分解能が向上し、特定の発光点領域の観測が可能なることを意味している。そこで、角度発散評価装置を応用し、実際に深さ分解測定装置を開発することにした。

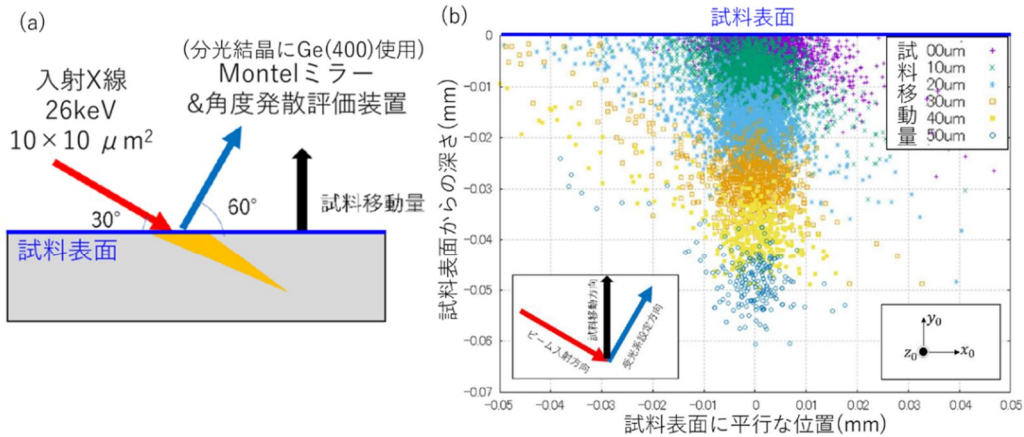


図5 (a) レイトレース法の計算に用いた計算条件のレイアウト。角度発散評価装置での分光結晶の角度は固定し、試料側を平行移動させている。(b) 各試料移動量に対する発光点の検出領域の計算結果。

深さ分解測定の実測

新たに角度発散評価装置を Montel ミラーと共に円偏光解析装置に組み込んだ装置を構築し、深さ分解測定の実証実験を行った。実験は大型放射光施設 SPring-8 の弊機構専用ビームライン BL11XU にて実施した。入射 X 線のエネルギーは 26 keV、屈折レンズで集光したビームサイズは $12.5 \mu\text{m} \times 11.0 \mu\text{m}$ 、入射角は 30° 、Montel ミラーは試料表面から 60° の方向に設置、といった条件で実験した。試料には電磁鋼板を用いた。まず、磁区の全体像を把握するために、図 6(a)のように $20 \mu\text{m}$ ステップで 1 mm 角の広範囲の測定をした。次に深さ分解測定を実施する対象として、図 6(a)にて四角枠で囲んだランセットと呼ばれる矢尻形状の異常磁区を選んだ。この異常磁区は表面近傍のみに現れることが予想されており、深部では消失していることが予想される。試料を図 5(a)のように移動させながら測定したものが図 6(b)である。表面から深部に行くにつれて表面にあった磁区が縮小し、周囲にあった逆方向の磁区に転じていく様子が観測できた。これは予想に則した結果であり、この測定手法が深さ分解測定として機能している証拠であると考えられる。我々はこの技術について特許出願を行った。

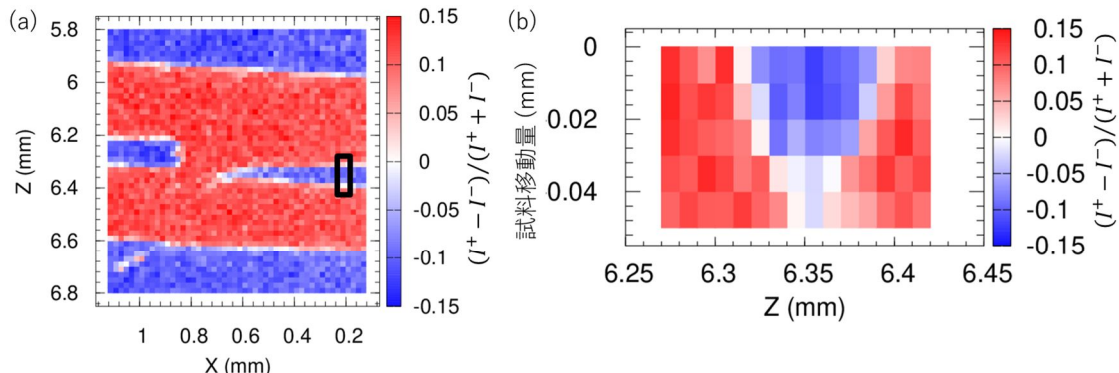


図6 深さ分解測定用磁気光学顕微鏡で測定した電磁鋼板試料の磁区MAP。(a) $20 \mu\text{m}$ ステップで 1 mm 角の範囲を測定した表面磁区MAP。(b) (a)の $X = 0.2 \text{ mm}$, $Z = 6.27 - 6.42 \text{ mm}$ の範囲を深さ分解測定した磁区MAP。カラーバーの値 $(I^+ - I^-)/(I^+ + I^-)$ は左右円偏光それぞれに敏感な配置に移相子をセッティングした際の検出強度 I^+ , I^- の差分を和で割ったものである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sugawara Kento, Inami Toshiya, Nakada Takahiro, Sakaguchi Yui, Takahashi Shin	4. 巻 130
2. 論文標題 Bulk-sensitive magnetic microscope utilizing x-ray magnetic circularly polarized emission	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 113901 ~ 113901
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0058201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Inami Toshiya, Sugawara Kento, Nakada Takahiro, Sakaguchi Yui, Takahashi Shin	4. 巻 59
2. 論文標題 Observation of Buried Magnetic Domains in Grain-Oriented Electrical Steel	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Magnetics	6. 最初と最後の頁 1 ~ 6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TMAG.2023.3237939	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Kento Sugawara, Toshiya Inami
2. 発表標題 Development of a magnetic microscope using X-ray magnetic circularly polarized emission
3. 学会等名 4th QST International Symposium -Innovation from Quantum Materials Science-（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菅原 健人、稲見 俊哉、中田 崇寛、阪口 友唯、高橋 真
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光を用いた磁気光学顕微鏡の開発
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会・合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菅原 健人、稲見 俊哉、中田 崇寛、阪口 友唯、高橋 真
2. 発表標題 X線磁気円偏光発光を用いたバルク敏感な磁気光学顕微鏡の開発
3. 学会等名 第58回X線分析討論会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計4件

産業財産権の名称 磁化測定装置及び磁化測定方法	発明者 稲見 俊哉、菅原 健人、綿貫 徹、小 出 明広、野村 拓	権利者 国立研究開発法 人量子科学技術 研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2021/44469	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 磁化測定方法	発明者 稲見 俊哉、菅原 健人、綿貫 徹、小 出 明広、野村 拓	権利者 国立研究開発法 人量子科学技術 研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2021/44470	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 磁化測定方法	発明者 稲見 俊哉、菅原 健人、綿貫 徹、小 出 明広、野村 拓	権利者 国立研究開発法 人量子科学技術 研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-58759	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 磁化測定装置及び磁化測定方法	発明者 稲見 俊哉、菅原 健人、綿貫 徹、小 出 明広、野村 拓	権利者 国立研究開発法 人量子科学技術 研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-002445	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

放射光を使った磁石の奥まで透ける顕微鏡 X線発光の新原理を用い開発に成功 https://www.qst.go.jp/site/press/20220125.html

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------