

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 15 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17458

研究課題名（和文）ナノ磁性材料の3次元磁気特性解析のためのX線強磁性共鳴顕微鏡の開発

研究課題名（英文）Development of an X-ray ferromagnetic resonance microscope for three-dimensional analysis of magnetic properties of nano-structured magnetic materials

研究代表者

上野 哲朗 (Ueno, Tetsuro)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点/元素戦略磁性材料研究拠点・NIMSポスドク研究員

研究者番号：20609747

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）：本研究ではナノ磁性材料の3次元磁気特性を解析するためのX線強磁性共鳴顕微鏡を開発することを目的とした。本装置によってナノ磁性材料において重要な異方性磁界、飽和磁化、磁気ダンピング定数の3次元空間分布を定量評価することが可能になる。各要素技術の検討と研究開発を行った結果、機械学習を用いた計測効率化など、将来的なX線強磁性共鳴顕微鏡の実現に向けた一定の成果を得た。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to develop an X-ray ferromagnetic resonance (XFMR) microscope to perform three-dimensional analysis of magnetic properties of nano-structured magnetic materials. This technique realizes quantitative analysis of three-dimensional spatial distribution of important magnetic parameters (anisotropy field, saturation magnetization, and magnetic dumping constant) in nano-structured magnetic materials. We examined elemental technologies and achieved some positive results for the future realization of an XFMR microscope; for example, improvement of measurement efficiency with use of a machine learning technique.

研究分野：応用物理学

キーワード：強磁性共鳴 X線磁気円二色性 X線顕微鏡 スピントロニクス ナノ構造 磁性

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 磁性超薄膜、多層膜、クラスター、ドットといったナノメートルスケールの大きさをもつ磁性体は、巨大磁気抵抗効果や垂直磁気異方性などの特異な磁氣的性質を示すことが知られている。これらの特異な磁氣的性質には電子のスピンが本質的に関わっている。ナノ磁性体をナノ磁性材料として素子に組み込み、電子の電荷に加えてスピンの自由度も利用する技術体系がスピントロニクスである。スピントロニクス素子の例として、絶縁体層を2つの強磁性金属層で挟んだ磁気トンネル接合素子(例: Fe/MgO/Fe)がある。磁気トンネル接合素子は省エネルギーな不揮発性メモリ、論理回路への応用が期待されている。高性能な磁気トンネル接合素子を実現するための強磁性金属層材料には「不揮発性を担保するための高い熱的安定性」、「省エネルギーのために電流誘起磁化反転に必要な臨界電流密度が小さいこと」、「高いトンネル磁気抵抗比」といった特性が要求される[引用文献]。これらの特性には異方性磁界(H_k)、飽和磁化(M_s)、磁気ダンピング定数(α)が関係しており、大きな H_k と M_s 、小さな α をもつ材料が望ましい。

(2) スピントロニクス材料の開発においてはこれらの磁氣的物性値を定量的に評価する必要があり、そのための実験手法が非常に重要である。強磁性共鳴(Ferromagnetic resonance: FMR)は強磁性体の磁気特性を調べる手法として広く用いられている。FMR共鳴磁場の角度依存性からは異方性磁界(H_k)、FMRスペクトルの線幅からは磁気ダンピング定数(α)を求めることができる。飽和磁化(M_s)の測定には振動試料型磁力計(Vibrating sample magnetometry: VSM)などの手法が用いられる。これらの手法を用いることは試料全体の性質(マクロな量)を調べることに対応する。

(3) 一方、これらのマクロな磁氣的性質を決定付けるミクロな磁氣的性質、すなわち原子のスピン磁気モーメント、軌道磁気モーメントを実験的に決定する手法として、X線内殻吸収磁気円二色性(X-ray magnetic circular dichroism: XMCD)分光法がある。この手法では試料に円偏光X線を照射し、それによる内殻電子の伝導バンドへの励起を観測するため元素選択性をもつ。すなわち合金や多層膜などの多元物質において元素種ごとの情報を抽出することができる。特にエネルギーが数100 eVから1 keV程度の軟X線を用いると、強磁性遷移金属の磁性を担う3d電子を直接観測することができる。これはスピントロニクス材料など、3d遷移金属を含む多種類の元素で構成される物質に対して非常に有効な手法であることを意味する。本研究で開発するX線強磁性共鳴顕微鏡は、軟X線をプローブとして用いるX線強磁性共鳴法にさらに空間分解能をもたせた顕微鏡である。本装置を用いることで、

スピントロニクス材料において重要な異方性磁界(H_k)、飽和磁化(M_s) (飽和スピン磁気モーメント)、磁気ダンピング定数(α)を一度に、かつ元素選択的に定量評価することが可能となる。いわゆる軟X線強磁性共鳴分光法自体は海外の放射光実験施設でいくつか開発されており研究例があるが、国内では未だ開発されていないのが現状である[引用文献]。さらにこれらに顕微鏡としての機能をもたせた装置は世界的にみても皆無である。

2. 研究の目的

研究期間内にX線強磁性共鳴顕微鏡を開発し、ナノ磁性材料を試料として実証実験を行う。外部磁場中のコプレーナ型導波路に試料を置き、高周波磁場を印加することで試料磁化の歳差運動を誘起する。円偏光軟X線をプローブとして、この磁化の歳差運動の動的性質を調べる。まずX線強磁性共鳴分光装置を開発し、パーマロイFe₅₆Ni₄₄薄膜を試料として元素選択的強磁性共鳴の測定を行う。次にX線強磁性共鳴分光装置を放射光X線顕微鏡と組み合わせることで空間分解能15 nm程度のX線強磁性共鳴顕微鏡を実現する。この点は本研究の特色であり、ナノ磁性材料の磁気特性の3次元(試料面内2次元+元素選択性を利用した試料深さ方向1次元)空間マッピングが可能になる。

本研究でX線強磁性共鳴顕微鏡が実現すれば、国内外において先駆的な研究となることは間違いない。X線強磁性共鳴顕微鏡の対象とする物質・材料群は数多く存在するが、特にスピントロニクス材料をはじめとするナノ磁性材料への応用において波及効果が大きいと予想される。スピントロニクス関連研究は国内で多くの研究グループが精力的に行っており、日本が世界をリードする研究分野の一つである。スピントロニクス材料における局所磁気ダイナミクスの解明は本質的な課題であり、スピントランスファートルクや電界誘起磁化反転など、元素選択的な手法であるX線強磁性共鳴顕微鏡の応用によって研究を加速させることが期待できる。さらに反強磁性多層膜、フェリ磁性多層膜など、界面でスピンの対向している系の磁気ダイナミクスの解明や、電場と磁場が複雑に相関するマルチフェロイック物質への応用などの展開が期待できる。また本手法で得られる磁気ダンピング定数等の物性値はマイクロ磁気シミュレーションなどの数値計算手法の入力パラメータとして利用できるため、物質・材料設計のための指針となる。

3. 研究の方法

(1) 放射光パルス同期信号の取得

本研究は高エネルギー加速器研究機構(KEK)・物質構造科学研究所の放射光科学施設(Photon Factory: PF)で実施する。まず高周波測定のための基本的なセットアップを組み上げる。PFでの放射光の発生周期(500

MHz = 1 ナノ秒に1パルス)に同期した信号を取り出す。この発生信号を任意波形発生器に入力し、500 MHzパルス波の高調波パルス波(500 MHz, 1 GHz, 1.5 GHz,...)を発生させる。さらにこの高調波パルス波に、試料に印加するマイクロ波の位相変調(0° と 180°)、ロックイン検出のための数kHzの変調信号を重ね合わせる。

(2) コプレーナ型導波路の設計・製作

マイクロ波の共振を起こして試料に高周波磁場を印加するためのコプレーナ型導波路の設計と製作を行う。導波路は窒化シリコン基板上に導体を蒸着して作成する。任意波形発生器からの信号をパワーアンプに入力し、コプレーナ型導波路に導く。ネットワークアナライザーを用いて0.5~12 GHz程度の周波数での回路の特性を解析し、実際の動作を調べる。

(3) X線強磁性共鳴分光装置の開発

X線強磁性共鳴分光装置の開発とKEK-PFにおけるテスト測定までを行う。超高真空マニピュレータに試料ホルダー、試料(パーマロイ $\text{Fe}_{55}\text{Ni}_{45}$ 薄膜)を載せたコプレーナ型導波路を取り付け、高周波測定系を接続する。パワーアンプからコプレーナ型導波路にマイクロ波が導入され、試料位置に高周波磁場を発生する。テスト測定では円偏光軟X線を試料に照射しつつ、任意波形発生器での遅延を少しずつ変えることで時分割のXMCD信号を得る。ロックインアンプにXMCD信号と任意波形発生器からの参照信号を入力し、ロックイン検出を行う。パーマロイ $\text{Fe}_{55}\text{Ni}_{45}$ 薄膜の異方性磁界(H_k)、飽和磁化(M_s)、磁気ダンピング定数()を実験的に決定し、文献値との比較検討を行う。これによって測定システムが正常に機能していることを確認する。この段階まで終了した時点で、国内初のX線強磁性共鳴分光装置を実現したことになる。

(4) X線強磁性共鳴顕微鏡の開発

ナノ磁性材料の3次元磁気特性解析に向けたX線強磁性共鳴顕微鏡を開発する。X線強磁性共鳴分光装置に顕微鏡としての機能をもたせるため、KEK-PFに設置されている走査型透過X線顕微鏡(Scanning transmission X-ray microscope: STXM)[引用文献]と組み合わせる。走査型X線顕微鏡はフレネルゾーンプレートによって集光したX線を試料上で走査して、試料を透過したX線の強度を測定することで顕微鏡像(空間分解能~15 nm)を得る手法である。フレネルゾーンプレートの焦点距離(数mm)に合わせて試料ホルダーを設計・製作する。この試料ホルダーにはヘルムホルツコイルを取り付け、X線強磁性共鳴測定のために試料に外部磁場を印加できる仕組みにする。

(5) ナノ磁性材料への応用

X線強磁性共鳴顕微鏡をナノ磁性材料へ応用し、その3次元磁気特性解析を試みる。ナノメートルスケールの磁性微粒子が分散したFe-MgOグラニューラ膜やFe/Ni多層膜ナノドットを試料として、異方性磁界、飽和磁化、磁気ダンピング定数の元素選択的な3次元空間マッピングを行う。

4. 研究成果

本研究の目的であるX線強磁性共鳴顕微鏡の実現のため、各要素技術の検討と研究開発を行った。当初の研究計画ではこれらの各要素技術の検討と開発を完了し、これらを組み合わせることで計測システムを構築する予定であった。検討すべき要素技術が予想外に多岐に渡ったことなどから目的達成には至らなかったが、以下の研究開発により将来的なX線強磁性共鳴顕微鏡の実現に向けた一定の成果を得た。

(1) コプレーナ型導波路の設計・製作

強磁性共鳴は静磁場中に置かれた強磁性体に高周波磁場を印加した際の磁化の歳差運動を検出し、磁化のダイナミクスを調べる実験手法である。強磁性共鳴装置には導波管中に試料をおく方法と導波路上に試料を置く方法の2種類があるが、放射光X線強磁性共鳴への適用を考慮し、本研究では導波路を用いる方法を採用した。コプレーナ型導波路を設計・製作し、ベクトルネットワークアナライザー(VNA)を用いて0~40 GHzまでの周波数特性を計測した。

(2) テスト計測用薄膜試料の作製

テスト計測用の試料としてMgO基板上に膜厚50 nmのFe薄膜、Ni薄膜、FePt薄膜を作製し、試料振動型磁束計を用いてこれらの磁気特性を確認した。

(3) 磁場自動掃引システムの開発

静磁場発生装置として小型の常伝導電磁石を用い、外部制御可能な安定化直流電源と計測・制御システム用プラットフォームであるLabVIEW(米国National Instruments社)を組み合わせた磁場自動掃引システムを構築した。

(4) 放射光パルス同期信号の取得と高調波信号の発生

放射光実験へ向けてKEK-PFにおいて、スペクトラムアナライザーを用いて放射光の発生周期に同期した信号を取り出し、約500 MHzであることを確認した。さらにシグナルジェネレータにコムジェネレータを接続し500 MHz信号の高調波信号(1 GHz, 1.5 GHz...)を発生させることに成功した。

(5) 交流磁場下での磁区構造のリアルタイム観察

X線強磁性共鳴顕微鏡では試料に数GHz程度の高周波磁場を印加して測定を行う。そこでその基礎技術として0.1 Hzから1 kHz程度の交

流磁場を印加可能な電磁石システムを開発した。市販の電磁石と任意波形発生器を組み合わせることで簡易的な交流磁場印加システムを作製した。このシステムを磁気光学カー効果顕微鏡に組み込み、軟磁性材料である鉄ガーネットの磁区構造の交流磁場下での挙動のリアルタイム観察に成功した。本研究開発で得られた知見はX線強磁性共鳴顕微鏡による高周波磁場かつnmスケールでの磁気特性計測に活用される。

(6) 機械学習を用いた計測効率化

X線強磁性共鳴顕微鏡で得られるシグナルは微弱でシグナル対ノイズ比が低いことが予想されるため、高感度かつ高効率な計測が必要である。そこで機械学習の手法を適用して測定を効率化するための検討を行った。まずX線強磁性共鳴スペクトルではなく、静的なX線磁気円二色性スペクトルへの機械学習手法の適用について検討した。機械学習手法として、分類問題や回帰問題に用いられるガウス過程モデルを適用した。ガウス過程モデルによるX線吸収スペクトル及びXMCDスペクトル形状の予測により、測定データ点数を大幅に少なくしつつ、従来型の測定と同程度の精度で磁気モーメントを定量評価することが可能であることがわかった。

<引用文献>

- S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura, H. Ohno, Nat. Mater. **9**, 721 (2010)
G. Boero, S. Rusponi, P. Bencock, R. S. Popovic, H. Brune, P. Gambardella, Appl. Phys. Lett. **87**, 152503 (2005)
M. K. Marcham, L. R. Shelford, S. A. Cavill, P. S. Keatley, W. Yu, P. Shafer, A. Neudert, J. R. Childress, J. A. Katine, E. Arenholz, N. D. Telling, G. van der Laan, R. J. Hicken, Phys. Rev. B **87**, 180403(R) (2013)
Y. Takeichi, N. Inami, H. Suga, C. Miyamoto, T. Ueno, K. Mase, Y. Takahashi, K. Ono, Rev. Sci. Instrum. **87**, 013704 (2016)

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0件)

〔学会発表〕(計1件)

Tetsuro Ueno, Hideitsu Hino, Ai Hashimoto, Yasuo Takeichi, Kanta Ono, High-throughput measurement of x-ray magnetic circular dichroism spectroscopy with machine learning, IEEE International Magnetism

Conference (INTERMAG Europe 2017),
2017年4月28日, Dublin (Ireland)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕該当なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上野 哲朗 (UENO, Tetsuro)
物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点/元素戦略磁性材料研究拠点・NIMS ポスドク研究員
研究者番号: 20609747

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

小野 寛太 (ONO, Kanta)
井波 暢人 (INAMI, Nobuhito)
武市 泰男 (TAKEICHI, Yasuo)
水口 将輝 (MIZUGUCHI, Masaki)
橋本 愛 (HASHIMOTO, Ai)
日野 英逸 (HINO, Hideitsu)