

令和 2 年 6 月 1 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K18311

研究課題名(和文) 確率論的な過程の分離可能な軟X線MCD顕微鏡の高時間分解能計測技術の確立

研究課題名(英文) Establishment of soft X-ray magnetic circular dichroism microscopy separating stochastically overlapped magnetization processes

研究代表者

豊木 研太郎 (Toyoki, Kentaro)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：90780007

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：磁性体の磁化過程は、非常に幅広い空間・時間スケールに因子を持つ現象である。特に磁化過程においてダイナミクスの観測が実験的に困難である、確率論的に生じる反転磁区の形成および伝播は、実験的な観測手法が少なく不明な点が多い。そこで本研究では、この確率的な現象をその素過程ごとに分離するため、放射光のパルス毎にField Programmable Logic Gate (FPGA)を用いてX線の波高解析を行い、波高の確率分布を測定する手法の開発を行った。結果として、走査型軟X線磁気円二色性顕微鏡において、100 kHz程度の繰り返し周波数で透過X線の波高解析を行い、イメージングする手法の開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した手法は、未だ改善の余地があるものの、確率論的な現象に関して、サブナノ秒オーダーの時間分解能かつサブマイクロオーダーの空間分解能で測定可能性のある数少ない手法である。試料や磁場領域に関して限定的であるものの、理論・実験両面で未開拓な部分の多いMHz帯の磁化過程の理解に関して今後有用であると考えられる。

また、本研究では軟X線磁気円二色性顕微鏡を用いた磁気イメージングに特化して開発を行ったが、手法の概念自体は種々の反応過程に応用可能であり、他の応用分野に関しても拡張可能であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：The magnetization process is a phenomenon, whose time and spatial region are widely dispersed. Especially, stochastic reversed domain nucleation and domain wall propagation remains unclear because there is not a well established method to observe such stochastic phenomenon with high time and spatial resolution. Thus, in this study, in order to divide this stochastic behavior to its elements, a new method, in which a wave height of each pulse X-ray are analyzed to probability distribution, was developed. As a result, magnetic imaging technique with 100 kHz-wave height analysis for transmitted X-ray was established with soft X-ray magnetic circular dichroism microscope.

研究分野：磁性体

キーワード：時分割 XMCD 走査型X線顕微鏡 磁化過程 確率論的

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

磁性体の磁化過程は、GHz~THz 帯の原子磁気モーメントの歳差運動から、場合によって年単位となる磁気余効まで、原子間の交換相互作用などからセンチメートルオーダーとなっても無視出来ない静磁気相互作用非常など、非常に幅広い空間・時間スケールに因子を持つ現象である。したがって、階層的な理解のために多くの実験的なアプローチが必須である。現在まで、特に磁化過程における、原子スケールとマイクロメートルスケールとの間、およびピコ秒オーダーからマイクロ~キロ秒オーダーとの間を隔てている現象として、ダイナミクスの観測が実験的に困難である、確率論的に生じる反転磁区の形成および伝播が挙げられる。このような確率論的な現象の存在を示すものとして、磁区構造がヒステリシスループの試行ごとに異なるという実験的な報告[1]や、有限温度では磁化反転時間が非決定論的であることを示す理論計算の報告などがなされている[2]。

このような確率論的な現象に対して、高時間分解能計測に必須の、従来の時分割測定法を適用すると、複数の中間状態が重畳した像を得ることになる。これは従来の時分割測定法は試行ごとに現象が完全に再現することを前提としているためである。そのため、これまで高時間分解能の磁気イメージングは、決定論的な磁化反転過程の生じる系を対象とするしかなかった。しかし、確率論的な磁化過程は特定の系においてのみ起こり得る現象ではなく、磁化過程の学理の充実には、これに取り組む必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、今まで理論計算でしか観測することの出来なかった確率論的な磁化過程の実験的観測を可能とする新規時分割測定法を開発することを目的とする。具体的には、パルス放射光と同期し、パルス毎に解析を行い、走査型磁気イメージングを行うことが出来る測定系の開発を行う。

3. 研究の方法

本研究では、確率論的な現象をその素過程ごとに分離するため、放射光のシングルバンチパルス毎に Field Programmable Logic Gate (FPGA) を用いて X 線の波高解析を行い、波高の確率分布を測定する手法の開発を行った。また、同時に確率論的な素過程を持つ、磁化反転現象に対しても各種検討を行った。

4. 研究成果

(1) 確率論的な磁化過程を含む現象の検討

本研究では種々の磁化反転を引き起こす方法を検討した。具体的には、電気磁気効果を用いたもの[3]、電圧誘起磁気異方性変調[4]を利用したもの、真空中に導入可能な小型コイルを利用したものなどである。この中で最後の小型コイルを用いたものが、比較的本手法におけるアプローチに合致したものであった。その理由としては、本手法によるアプローチにおいて必須である試料の磁気状態を再初期化することが比較的容易であることが挙げられる。また、空芯コイルによる磁化制御は、高周波材料など分野で応用上非常に重要である。

この観点に則り、放射光を測定補助測定として、異常 Hall 効果を用いた交流磁化率測定法を開発を行った。この取り組みに対して、試験試料として Ni/Co 人工格子膜を採用した。本研究で開発した異常 Hall 効果による交流磁化率測定法では、交流磁場印加の周波数に対してロックインアンプを同期させることで測定を行った。この手法によって測定した Ni/Co 人工格子膜 (Au(3 nm)/[Ni(0.4 nm)/Co(0.2 nm)]_n/Ni(0.4)/Ru(20)/Ta(5 nm)//SiO₂/Si(001) 基板, $n=27$) の交流磁化率の直流バイアス磁場依存性を図 1(a) に示す。1 kHz における交流磁化率は、振幅 3 Oe 程度の交流磁場に対して、おおよそ飽和磁化に対する割合で、最大 0.1% 程度であった。この方法で得られた交流帯磁率は、リコイル曲線測定によって得られた直流帯磁率 (図 1(b)) と、磁場依存性の形状および絶対値でほぼ一致した。

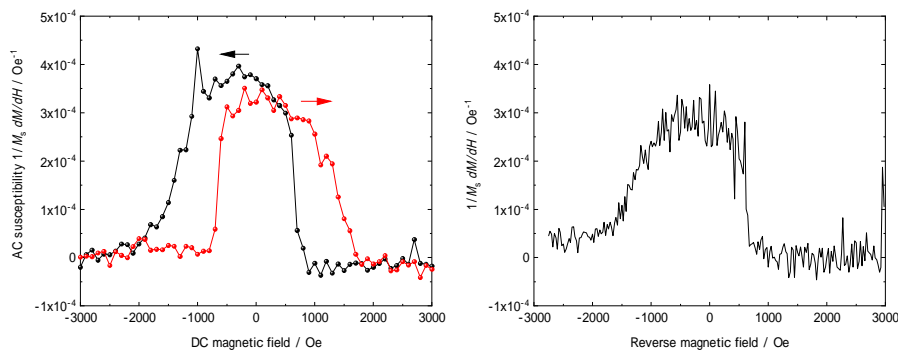


図 1. (a) 1 kHz における Ni/Co 人工格子膜の交流帯磁率の直流磁場依存性。矢印は磁場掃引方向を示す。(b) リコイル曲線の微分から換算した Ni/Co 人工格子膜の直流帯磁率。

(2) Ni/Co 人工格子膜の交流帯磁率の起源

この Ni/Co 人工格子膜の交流帯磁率のメカニズムを考察するため、同様の膜組成 (Pt(3 nm)/[Ni(0.4 nm)/Co(0.2 nm)] $_n$ /Ni(0.4 nm)/Pt(10 nm)//Si-N メンブレン基板, $n = 27$) とした試料を走査型軟 X 線磁気円二色性(magnetic circular dichroism: MCD)顕微鏡で観察した。その結果、垂直磁化膜に典型的なメイズパターンが観察され、磁区幅として 50-100 nm 程度の値が得られた。したがって、3 Oe 程度の交流磁場における磁壁の正味の移動量は、0.5-1.0 nm 程度であると推察される。この数原子層オーダーとなる小さな磁壁の正味の移動量は、確率論的な挙動によってならされている可能性がある。すなわち、実際にはより大きな移動量を持つにも関わらず、高周波磁場の各周期で移動が起こる場合と、起こらない場合が存在し、正味で磁化率が低下して観察されるという描像が考えられ得る。そこで本研究では低磁場印加用のコイルを具備した専用試料ステージによって同様に 3 Oe 程度の低磁場を印加した状態で磁区観察を行った。その結果、磁場印加によって磁区像の有意な変化は見られなかった。これは磁壁が空間分解能以下の移動をしたことに対応すると考えられる。すなわち、Ni/Co 人工格子膜におけるメイズパターンの 3 Oe 程度の磁場における磁化率は、実際に数原子層程度の磁壁の移動によるものである可能性が高いと言える。

(3) FPGA を用いたデータ収録システムによるシングルバンチ切り出し

放射光のパルスごとの解析のためには、高速なフォトダイオードおよびアナログデジタル変換(ADC)を用いて、シングルバンチを波形として切り出すことは必須である。そのために、本研究では高速な、PIN フォトダイオードから電流アンプによって増幅し、その信号を FPGA を具備した ADC によって収録するシステムの開発を行った。その結果、FPGA を用いたデータ収録システムを用い、シングルバンチの切り出しに成功した。測定におけるバンチ切り出しのレートはおよそ 100 kHz 程度であった。すなわち、元の放射光パルスの繰り返し周波数に対して、2 回に 1 回の収録に成功したと言える。

(4) シングルバンチのみ用いた走査型軟 X 線イメージング

測定は BL25SU に常設された走査型軟 X 線 MCD 顕微鏡にて行った。試料を本研究で開発した高周波磁場印加用のコイルを具備した専用試料ステージに固定し、真空チャンバー内に導入した。試料の膜構造は Pt(3 nm)/{Ni(0.4 nm)/Co(0.2 nm)} $_{27}$ /Ni(0.4 nm)/Pt(10 nm)//SiN-membrane とした。イメージングの際は、従来手法による全入射光を平均した走査型イメージングと、バンチ切り出しを行った上で各パルス波高を解析する新規イメージング手法を使用した。その場波高解析を行う手法では、試行ごとの波高をすべて記録した。

図 2(a), (b)にそれぞれ、従来手法で得られた磁区像と、上記手法によって波高解析を行った場合の磁区像を示す。波高解析の平均による像でも、シングルバンチのみを用いたにも関わらず、やや信号雑音比が低いが、従来手法と同様の磁区像を得ることに成功した。信号雑音比が低い原因として、試料の磁区サイズが空間分解能以下のサイズとなってしまったため、コントラストの低下が生じてしまったことが挙げられる。また、もう一つの原因として、ピエゾ素子の振動が挙げられる。10 nm/pixel 程度の微小領域の観察では、60 μ m 程度の比較的広い領域を測定可能な試料スキャン用のピエゾ素子では、図 1(a)に見られるような微小な振動が問題となることもわかった。図 2(c)に示した像は、波高解析結果に関して平均ではなく標準偏差をマッピングした結果である。十分な信号雑音比が得られれば、ピエゾ振動などによる揺らぎによって、生じる揺らぎをイメージング可能であるはずであるが、今回はそのような結果は得られなかった。これは、試料の磁区構造が極めて小さく、十分な信号変化が得られなかったことが原因であると考えられる。

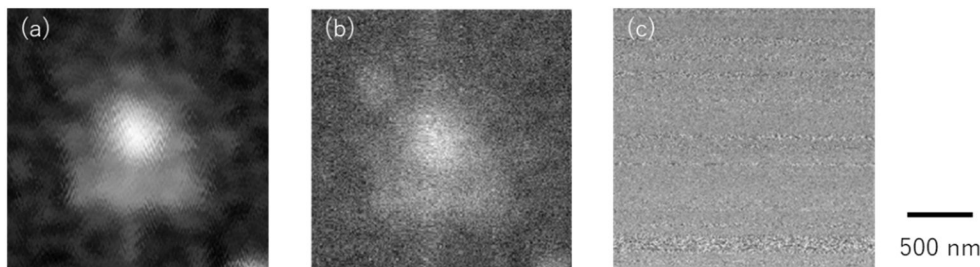


図 2.(a) 全入射光収録した場合、および(b) H モードシングルバンチのみ収録した場合に得られた磁区像。

以上のように、確率論的な磁化過程を解析可能な時分割測定法の要素技術の開発に成功した。一方で、その観測自体には未だ改善の余地が必要である。改善の余地としては、磁化反転を引き起こすために必要な磁場を高い繰り返し周波数で得ること、小さな磁区サイズを十分なコントラストで観察するために軟 X 線 MCD 顕微鏡の高分解能化、などが挙げられる。また、より高い信号雑音比を得るために、試料を最適化する微細加工技術に関しても検討の余地があると考えられる。

- [2] M. Nishio and S. Miyashita, Phys. Rev. B, **91**, 134411 (2015).
- [3] Y. Shiratsuchi *et al.*, APL Mater., **6**, 121104 (2018).
- [4] Y. Shiota *et al.*, Nat. Mater., **11**, 39 (2012).

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Shiratsuchi Yu, Yoshida Hiroaki, Kotani Yoshinori, Toyoki Kentaro, Nguyen Thi Van Anh, Nakamura Tetsuya, Nakatani Ryoichi	4. 巻 6
2. 論文標題 Antiferromagnetic domain wall creep driven by magnetoelectric effect	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 121104 ~ 121104
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5053928	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1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Kentaro Toyoki
2. 発表標題 Magneto-electric driven antiferromagnetic domain reversal and domain wall dynamics
3. 学会等名 MMM2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

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