

令和 4 年 6 月 28 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12655

研究課題名(和文) 磁性多層膜の埋もれた電子・磁気状態解析を可能にする磁場印加その場光電子分光計測

研究課題名(英文) Development of measuring techniques for electric and magnetic states at buried interface in spintronics materials using hard X-ray photoelectron spectroscopy

研究代表者

保井 晃 (Yasui, Akira)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・分光推進室・主幹研究員

研究者番号：40455291

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：スピントロニクス材料の物性を決める磁性層近傍の電子・磁気状態を解析するための実験手法の確立を目指した。そのために、高輝度放射光を用いた可変磁場印加下での硬X線光電子分光(HAXPES)測定技術の開発を行った。Cr/Co多層膜に対して永久磁石による磁場印加HAXPES測定を試行し、200 mT印加下においてもHAXPES計測が可能であることを確認した。永久磁石および電磁石を用いた2種の可変磁場印加機構を製作した。どちらの機構も最大磁場は300 mTである。また、吸収端近傍でエネルギーを掃引しつつHAXPESスペクトルの磁気円二色性(MCD)測定を行う、共鳴MCD-HAXPES計測手法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代IT機器の基盤となるスピントロニクス材料の研究は盛んに行われている現在でも、物性を決定する磁性層界面での電子・磁気状態の理解は進んでいない。この詳細を調べることが可能である、磁場印加下での光電子分光技術を開発した。磁場印加下での光電子分光は磁場の影響で光電子自体の検出が困難であるため、これまで殆ど実施されていなかった。しかしながら、光電子が高エネルギーである硬X線光電子分光を用いることで、200 mT磁場印加下においても光電子分光測定が可能であることを示した。本研究は次世代IT機器の開発研究の促進に寄与すると期待する。

研究成果の概要(英文)：In this study, I aimed to establish an experimental method to analyze the electronic and magnetic states around magnetic layers in spintronic materials that govern its physical properties. For this purpose, I have developed a measurement technique of the hard X-ray photoelectron spectroscopy (HAXPES) under applied magnetic field. HAXPES measurements with applying magnetic field were tested for Cr/Co multilayer sample and I confirmed that the measurement was possible even at 200 mT. Two types of magnetic-field application mechanisms were developed, one using a permanent magnet and the other using an electromagnet. Both mechanisms are designed to raise the magnetic field at the measurement position up to 300 mT. We have also established a "resonant MCD-HAXPES" measurement technique to obtain a magnetic circular dichroism (MCD) of HAXPES spectrum while scanning the photon energy.

研究分野：放射光実験

キーワード：光電子分光 磁性材料 スピントロニクス

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクス材料は、高密度記録媒体や低消費電力、かつ、高速・大容量な次世代メモリ等への応用が期待されており、次世代 IT 機器の基盤となる材料である。そのスピントロニクス材料には多様な磁性多層膜が用いられており、その磁気特性を支配するのは、磁性層近傍の磁気モーメントである。しかしながら、スピントロニクス材料が盛んに研究されている現在でも、磁性層近傍の磁気モーメントの詳細は知られていない。これは、埋もれた電子・磁気状態を解析できる実験手法が確立されていないことが大きな要因である。

2. 研究の目的

本研究では、「埋もれた磁性層近傍で磁気モーメント、および、それと強く関係する化学結合状態がどのように分布しているか」を明らかにするために、埋もれた磁性層近傍の磁気モーメント・化学結合状態分布を詳細に解析する計測技術の確立を目指した。具体的には、可変磁場印加条件下での硬 X 線光電子分光(HAXPES)計測技術の開発を行った。本計測手法は、従来の(軟 X 線領域の)光電子分光に比べ深い検出深度を持つ HAXPES 計測の特徴を活かして、酸化防止膜等に埋もれた界面における磁化分布解析と同時に、デバイス機能発現と深く関わる磁性層界面電子状態解析も可能にする、ユニークなものである。しかしながら、これまで、磁場影響下での光電子分光は、ローレンツ偏向のため光電子の飛行軌道が大きく曲げられ計測自体が困難であることから、積極的に実施されてこなかった。光電子が高エネルギーである HAXPES を用いることで、この課題を解決できると考えた。

3. 研究の方法

埋もれた磁性層近傍の磁気モーメント・化学結合状態分布を明らかにするために、可変磁場印加条件下での HAXPES 計測技術の確立を目指した。そのために、主に(1)HAXPES 計測のための可変磁場印加システムの開発、(2)永久磁石を用いた固定磁場印加条件下での HAXPES 計測、(3)共鳴 HAXPES スペクトルの磁気円二色性(MCD-HAXPES)測定技術の開発の3項目について実施した。項目(1)の電磁石を用いた可変磁場印加システムの設計は電磁場解析ソフトウェアである PerMag を用いて行った。また、項目(2)、(3)の HAXPES 実験、および、測定技術開発は、大型放射光施設 SPring-8 の BL09XU にて行った。本実験・開発では、磁性多層膜中の埋もれた磁気モーメントを調べるために円偏光 X 線を利用した MCD-HAXPES 測定が必要である。SPring-8 では、通常は水平偏光 X 線が得られるが、その水平偏光 X 線から円偏光 X 線を生成するために、透過型のダイヤモンド移相子(厚さ 0.6mm)を用いた。ダイヤモンド結晶中を X 線を透過させるため、円偏光 X 線の強度は、透過前の水平偏光 X 線のそれと比べ約 40%となる。したがって、MCD-HAXPES 測定を高効率に行うためには、水平偏光 X 線時の X 線強度が大きいことが求められる。さらに、磁場印加計測時に、試料周りから発生する磁場による光電子の影響を極力低減するためには、高エネルギー X 線を用いた HAXPES 計測が必要である。SPring-8 BL09XU には、低指数の Si(311)高エネルギー分解能モノクロメータと長尺の集光ミラーがインストールされているため、非常に高強度の高エネルギー分解能 X 線を利用できる。さらに、本ビームラインに常設されている HAXPES 装置の光電子アナライザーはシエンタオミクロン社の R4000L1-12kV であり、12kV までの耐圧性能を有していることから、本開発に必要な高エネルギー光電子の観測が可能である。

4. 研究成果

上記、各項目について成果をまとめる。

(1) HAXPES 計測のための可変磁場印加システムの開発

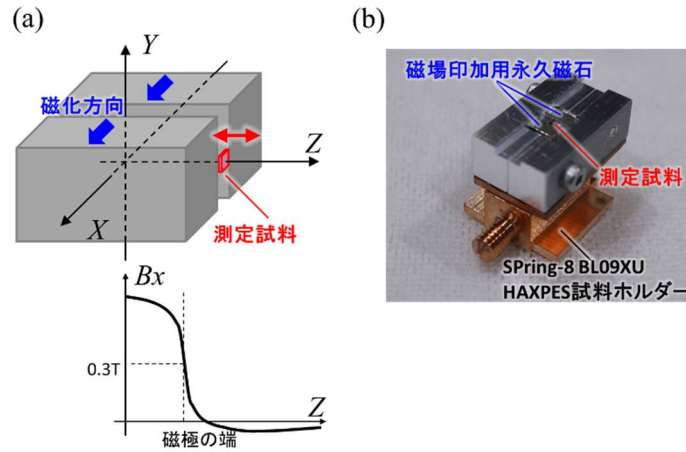


図 1: (a) 永久磁石を用いた可変磁場印加システム概念図。磁場印加方向は試料面内方向（図中 X 方向）である。試料を磁極と直交方向に移動可能にすることで試料に印加される磁場強度が変化する。(b) 製作した磁場印加システム。磁場印加用永久磁石とそれをホールドする治具で構成される。本システムは SPring-8 BL09XU の HAXPES 試料ホルダーにマウント可能である。

永久磁石を用いた可変磁場印加システムを開発した。そのシステムの写真を図 1 に示す。本システムは、SPring-8 BL09XU で通常使用されている試料ホルダーに搭載可能な非常にコンパクトなものである。これにより、本ビームラインに常設の試料移送機構を用いて試料交換が可能である。このシステムでは、2つの永久磁石による磁極間に試料を配置し、試料を磁極方向と直交方向に移動させることで磁場強度を制御できる。永久磁石磁極の端面と同じ高さに試料を配置した時に、試料位置での磁場強度が 300 mT になるように設計した。試料を上方に移動させることで急激に磁場強度を減少させることが可能である。

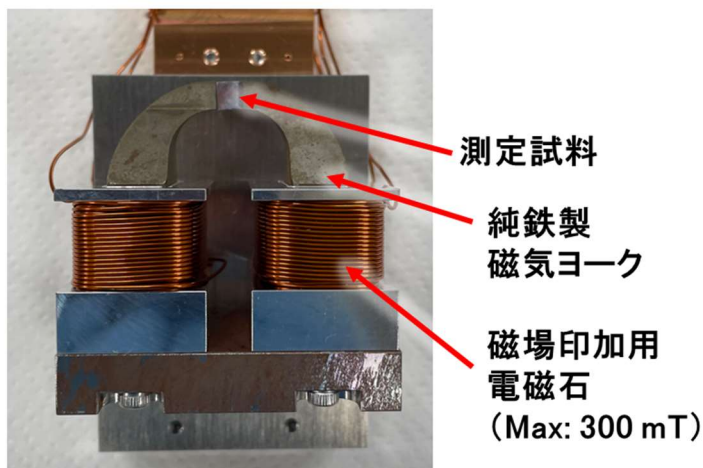


図 2: (a) 製作した電磁石を用いた可変磁場印加システム。測定試料と純鉄製磁気ヨークで磁気閉回路を形成し、漏洩磁場を大幅に低減することが可能である。

一方で、電磁石を用いた可変磁場印加システムの設計を進めた。当初は、試料交換を可能にするために、上記の永久磁石を用いたシステムと同様に、SPring-8 BL09XU の HAXPES 試料ホルダーに搭載可能な超小型のシステムの構築を目指したが、試料付近の漏洩磁場の影響を低減することが予想以上に困難であることが判明したため、容易な試料交換はあきらめ、大型ではあるが漏洩磁場を低減できる電磁石システムの開発を行った。開発した磁場印加システムの写真を図 2 に示す。開発した磁場印加システムは 2つの電磁石を有する純鉄製の磁気閉回路であり、試料位置での最大印加磁場は 300 mT である。漏洩磁場を極力抑えるために、電磁石部と磁極部を滑らかにつなぐように工夫した。これにより、300mT の磁場印加条件下で漏洩磁場を 5 mT 以下に抑えることに成功した。

ただし、漏洩磁場の低減方法の確立に想定以上に時間を要してしまったことと、コロナ感染拡大による SPring-8 施設の一時停止、さらに本研究開発に利用している SPring-8 BL09XU ビームラインが 2021 年に大幅な改修作業のため一時停止したことが重なり、開発した 2つの磁場印加システムを用いた放射光実験は実施できなかった。本科研費研究期間外となってしまうが、今後、これらのシステムを用いた実験を実施する予定である。

(2) 永久磁石を用いた固定磁場印加条件下での HAXPES 計測

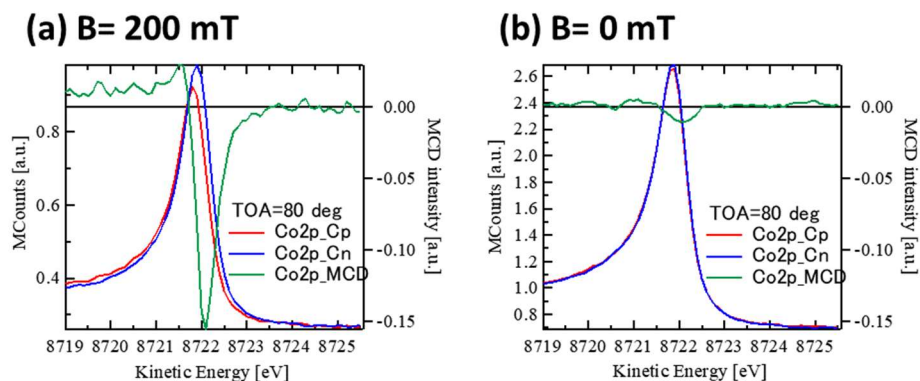


図 3: Cr/Co 多層膜の(a) 200 mT 磁場印加下、および、(b) 無磁場下での Co 2p 内殻 MCD-HAXPES スペクトル。200 mT 印加条件下において明瞭な MCD シグナルが得られた。

Cr/Co 多層膜について永久磁石による固定磁場印加下の HAXPES 計測を実施した。Cr/Co 多層膜は、強い反強磁性結合を示すことが知られている。Co 層界面での磁化分布を明らかにするべく、磁場印加条件下、無磁場条件下での角度分解 HAXPES 測定を行った。測定は入射光エネルギー9.5 keV の高輝度硬 X 線を用いた。磁場の ON/OFF 切替は、HAXPES 装置の超高真空チャンバー内で着磁用永久磁石の向きを変えることで実現した。試料の膜構成は次のとおりである：Pt[2]/(Cr[0.5]/Co[1.5])20/Cr[5]/Pt[20]/sapphire(0001)。なお、各膜の膜厚を大カッコで示した。

図 3 に 200 mT 磁場印加条件下、および、無磁場下での Co 2p MCD-HAXPES スペクトルを示す。200 mT 印加条件下では強磁性層の Co 2p 内殻光電子スペクトルに明瞭な MCD シグナルが見られたが、無磁場条件では MCD シグナルは見られなかった。このことから、確かに試料に磁場が印加されており、その条件においても HAXPES 計測が可能であることの確証を得た。

(3) 共鳴 HAXPES スペクトルの磁気円二色性測定技術の開発

吸収端近傍でエネルギー掃引しながら MCD-HAXPES 計測を行うことで、従来の MCD-HAXPES 計測や X 線吸収計測を超えた詳細な電子・磁気状態解析が可能になる。この共鳴 MCD-HAXPES 計測を行うには、入射光エネルギーを変更するたびに、高分解能モノクロメータを調整するだけでなく、円偏光を得るためにダイヤモンド移相子の細かな調整が必要である。上記のとおり、SPring-8 BL09XU は 2021 年にビームライン光学系装置の大幅なアップグレードが行われた。その際に導入された 2 連のダイヤモンド移相子調整機構により、5.9 -9.5 keV の広帯域において、偏光度 90% 以上の高偏向縦直線/円偏光 X 線を利用可能になった。さらにアップグレードにより、移相子装置が常設されたことで、調整作業が簡便になるとともに性能が安定化した。ビームラインアップグレード後の SPring-8 BL09XU において、本技術を確立し、CoFe 試料を用いて試験測定を行った。Fe K 吸収端近傍($h\nu=7.09-7.14$ keV)において Fe 2p 内殻の共鳴 MCD-HAXPES 測定を行った。各エネルギー点において、明瞭な MCD シグナルが得られ、MCD シグナル強度は入射光エネルギー依存性を示すことを確認できた。

本研究により、実デバイスへの応用実現に必要な要素技術を確立し、高い汎用性を図った。開発した磁場印加機構の放射光実験への展開は遅れているが、概ね計測技術は確立したものと考えている。本開発技術は、Co/Ru 系の巨大磁気抵抗(GMR)素子などの次世代 IT 機器の開発研究の促進に寄与する。

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 1件）

1. 著者名 保井 晃、池永 英司、中村 哲也	4. 巻 9
2. 論文標題 磁場印加条件下での HAXPES 計測技術開発	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 SPring-8/SACLA利用研究成果集	6. 最初と最後の頁 490 ~ 495
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.18957/rr.9.6.490	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 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Akira Yasui, Yasumasa Takagi, Taito Osaka, Michihiro Sugahara, Yasunori Senba, Haruhiko Ohashi, Naomi Kawamura, Kyo Nakajima, Koji Motomura, Kenji Tamasaku, Yusuke Tamenori, Makina Yabashi
2. 発表標題 Upgrade of HAXPES functionality in beamline BL09XU of SPring-8
3. 学会等名 Material Research Meeting 2021（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 保井 晃、高木 康多、大坂 泰斗、菅原 道泰、仙波 泰徳、大橋 治彦、河村 直己、中嶋 享、本村 幸治、玉作 賢治、為則 雄祐、矢橋 牧名
2. 発表標題 SPring-8 BL09XUにおける硬X線光電子分光計測技術の進展
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 保井 晃、池永 英司
2. 発表標題 スピントロニクス材料の埋もれた界面における磁化分布計測を指向した 硬X線光電子分光技術開発
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akira Yasui, Naomi Kawamura, Eiji Ikenaga, Masaichiro Mizumaki, Satoshi Tsutsui, and Kojiro Mimura
2. 発表標題 Advances of resonant HAXPES in BL09XU of SPring-8 and its applications
3. 学会等名 8th International Conference on Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy (HAXPES2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akira Yasui and Eiji Ikenaga
2. 発表標題 Development of Measurement Technique for Magnetization Distribution at Buried Interface in Spintronics Materials using Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy
3. 学会等名 International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2019 (ICMaSS2019) (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

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