

機関番号：84502
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2008～2010
 課題番号：20612023
 研究課題名（和文） 放射光のコヒーレンスと偏光特性を活用した硬X線磁気ホログラフィー法の開発
 研究課題名（英文） Hard-X-ray magnetic holographic imaging using coherence and polarization properties of synchrotron radiation
 研究代表者
 鈴木 基寛（SUZUKI MOTOHIRO）
 財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員
 研究者番号：60443553

研究成果の概要（和文）：

次世代の超高密度磁気記録材料であるビットパターン媒体等の磁区構造を10 nm以下の分解能で観察することを目的とし、硬X線を用いたフーリエ変換ホログラフィー測定法の開発を行った。放射光の円偏光特性と空間干渉性を活用することで、一辺100 nmのCo/Pt多層膜磁気ドットの電荷密度像を30 nmの空間分解能で得た。磁気イメージングについては測定精度の改善が課題であり、実験配置や解析法の改良を進めていく。

研究成果の概要（英文）：

Lensless Fourier transform holography measurement using hard X-rays was developed to observe the magnetic domain structure in bit-patterned media for ultradense data recording, with a sub-10-nm spatial resolution. This technique used the coherence and polarization properties of synchrotron X-rays. A charge density image of the magnetic dots made of Co/Pt multilayer was successfully obtained with a 30-nm resolution. Magnetic imaging has been done but the statistical accuracy should be improved. Refinements in the experimental arrangement and analysis method are ongoing.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
2009年度	100,000	30,000	130,000
2010年度	100,000	30,000	130,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：X線磁気分光、X線イメージング

科研費の分科・細目：量子ビーム科学

キーワード：放射線・X線、粒子線、放射光、磁気記録、磁性、イメージング

1. 研究開始当初の背景

情報化社会を支える技術的基盤のひとつが磁気記録である。1 Tbit/in² という超高密度記録を達成するためのブレイクスルーとして、連続膜からビットパターン媒体への移行が進められている。このようなナノメートルサイズの媒体評価のため、2010年には10 nm以下の空間分解能を持つナノ磁気プ

ローブの開発が必要になると言われている。電子顕微鏡では高分解能な画像評価が可能だが、磁気的情報は十分には得られない。ナノ構造体の形状やサイズに起因する磁化分布や磁気特性は実験的には未知であり、ナノスケールのモルフォロジーと磁性との関係を明らかにする評価法が求められている。また、M-RAM等の実デバイスでは磁気記録層

の上下に少なくとも数 10 nm 厚さの保護層や電極が存在するため、電子線による手法では実デバイスの観察は非常に難しい。そこで、本研究では、放射光リングから得られる透過力の高い硬 X 線を使った磁気観察手法を開発する。

2. 研究の目的

本研究では、硬 X 線を用いたフーリエ変換ホログラフィー測定により、ナノ磁性膜や磁気記録媒体の磁区構造を 10 nm 以下の空間分解能で観察する手法の開発を目的とする。この手法は放射光 X 線のコヒーレンス性と偏光特性をフルに活用し、数 μm の透過長を持つ硬 X 線を用いる点に特徴がある。原理的に X 線の波長程度の分解能が期待でき、元素選択性、およびバルク敏感性という、電子顕微鏡や磁気力顕微鏡など従来の観察法では得られない特性を持つ新しい磁区観察法となりうる。さらに、現在建設中の X 線自由電子レーザーが完成したあかつきには、直ちにその X 線レーザー光を用いた研究、たとえばフェムト秒オーダーでの磁区ダイナミクスの観測や 3 次元磁区観察へと発展させることを想定している。

3. 研究の方法

放射光リングから得られる、光子エネルギー 10 keV 程度の硬 X 線を用いたフーリエ変換ホログラフィー法を開発する。実験は SPring-8 の磁性材料ビームライン BL39XU で行った。当初の空間分解能は 100 nm を目標とする。観察対象としては、100 nm から 1 μm 程度の構造をもつ磁気ドット試料を模倣的試料として用いる。入射 X 線のコヒーレンス長の評価、コヒーレンス制御のための最適光学系の設計、参照光源の最適化が解決すべき主なテーマである。とりわけ、透過力の高い硬 X 線に対して用いる参照光源として、穴ではなく、散乱体を位相物体として用いる方法の開発を重点とする。この目的のために数値シミュレーションを実験と並行して行う。

図 1 に本研究で開発した、硬 X 線磁気ホログラフィー測定の実験配置を示す。ビームラインのダイヤモンド移相子によって生成された円偏光 X 線を $\phi 10 \mu\text{m}$ 程度のピンホールに入射し、試料位置で数ミクロンの空間コヒーレンス長を確保する。試料基板には、磁性膜試料本体と、参照光源用の穴、もしくは散乱体が 1 μm 程度の距離に近接して作製される。試料後方に X 線 CCD 検出器を配置し、参照光源からの参照光と試料透過光との干

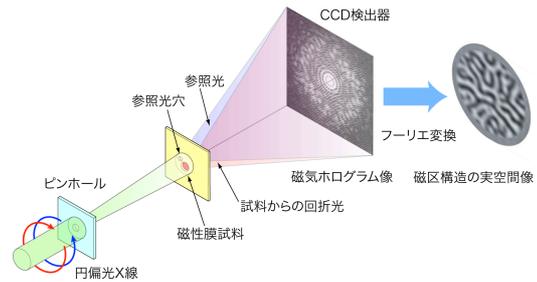


図 1. 硬 X 線磁気ホログラフィー測定の実験配置。

渉によるホログラム像を記録する。ホログラム像をフーリエ変換することにより、試料の実像が得られる。磁気ホログラフィー取得のためには、試料中の目的磁性元素の元素吸収端に X 線エネルギーを設定し、入射光が右回り円偏光と左回り円偏光に対して測定した 2 つのホログラム像の差分 (X 線磁気円二色性: XMCD 信号) から、磁気イメージを得る。

4. 研究成果

(1) 電荷散乱ホログラフィー測定

「3. 研究の方法」で述べたように、磁気ホログラフィー像は左右の円偏光に対して取得した 2 枚の電荷ホログラフィー像の差分から得られる。そのため、磁気ホログラフィー実験の前段階として、電荷ホログラフィー測定の開発を行った。

観察試料として Ta 膜上に文字パターンを描画加工したものをを用いた。図 2 に、試料の走査型電子顕微鏡像を示す。厚さ 240 nm の SiC メンブレン膜上に 2.8 μm 厚の Ta 膜を成膜し、電子ビームリソグラフィーで大きさ $1.0 \times 1.0 \mu\text{m}^2$ の“F”文字形状のパターンを作製した。参照光源として、直径 185 nm の穴あるいは散乱体を“F”の中心から 2.5 μm の位置に 3 個配置した。ホログラフィー試料では、参照光源は理想的には点光源であることが望ましい。しかし、透過力の高い硬 X 線に対しては、厚さ数ミクロンの Ta 膜や重金属膜でも完全な遮弊体とはならず、膜部分からの透過 X 線が余計なバックグラウンドとなることが懸念された。そこで、穴ではなく散乱体を参照光源として用いるという着想に至った。この方法の有効性を検証するため、参照光源を穴としたものと散乱体としたものの、陰陽逆の二種類の試料を準備した。それぞれ、凹試料 [図 2(a), (c)] および凸試料 [図 2(b), (d)] と呼んだ。

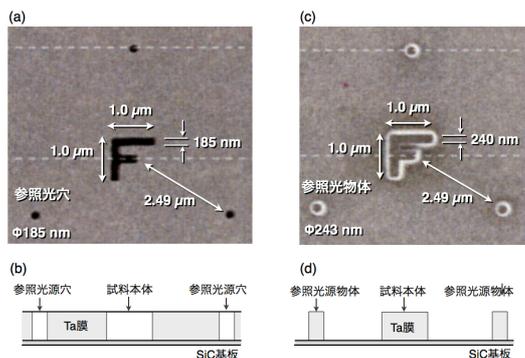


図 2. 電荷ホログラフィー測定に用いた試料。

実験にはエネルギー5 keV (波長 $\lambda = 0.248$ nm) のX線を用いた。ホログラフィー測定に先立ち、ビームラインでのX線の空間コヒーレンス長を評価した。ピンホールおよびスリットからの回折パターンをCCD検出器で取得し、干渉縞の可視度から、空間コヒーレンス長を $10 \mu\text{m}$ と見積もった。この値は、今回用いた試料における物体“F”と参照光源の距離よりも十分長いため、“F”と参照光源を可干渉に照明することができる。

図3に凹試料に対して取得したホログラム像を示す。物体“F”と3つの参照光源からの散乱光の干渉により、蜂の巣状の細かい干渉パターンが明瞭に記録されている。また、中心から十文字状に広がるパターンは、物体“F”の形状を反映している。最も強度の強い中心部と周辺部の弱い回折の強度比は7桁以上ある。CCDの露光時間を変えて多段階露光を行い、中心部の強度成分を $\phi 1$ mmの銅の円盤で適切にマスクすることで、7桁もの測定のダイナミックレンジを実現した。

図4にホログラム像を計算機でフーリエ変換(FFT)することによって得られた実空間像を示す。図4(a)の凹試料の結果では、線幅185 nmの物体“F”の構造がよく再現されている。像の断面の傾きから、空間分解能をおよそ 100 nmと見積もった。また、再生像には6個の“F”が得られている。これは、3個の参照光源それぞれと試料との干渉によって多重像(参照光源1個あたり、一組の実像と共役像が中心対称の位置に現れる)がホログラムに記録されたためである。これらの多重像を足し合わせることでノイズを減らし、イメージングの精度を高めることができる。

一方で、“F”像の周辺や中心部には実際の試料にはない強度変調(波紋のようなパターン)が現れており、像再生が完全ではないことを示している。図4(b)には、参照光源として散乱体を用いた凸試料についての結果を示す。同様な“F”形状が再現されてい

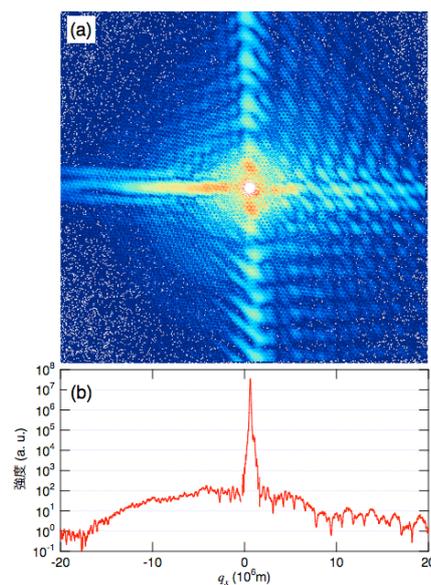


図 3. (a) 凹試料からの電荷ホログラムパターン。(b) パターンの横方向の断面図。

るが、凹試料の結果と比べて“F”の周囲の

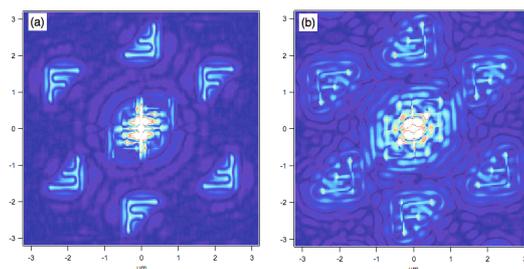


図 4. ホログラムパターンをフーリエ変換することで得られた試料の実空間像。(a) 凹試料、(b) 凸試料に対する結果。

波紋パターンが目立ち、分解能も低下している。波紋状のパターンは、FFTの際にホログラム像中心部の大強度部分をマスクしたことで、情報が一部欠落したためであると考えている。中心部の成分は、試料前のピンホールからの回折がTa膜をそのまま透過してCCD検出器に到達したものである。凸試料では、Ta膜の部分がほとんどないために、より大強度の透過X線がCCD検出器に入射する。その結果、再生像が劣化していると考えられる。ピンホールからの回折の影響は、透過力の高い硬X線でのフーリエ変換ホログラフィー法に特有の問題であり、実験上この影響をいかに除くかが今後の課題である。解析法についても、中心部分をマスクする処理の最適化や、反復位相回復法を採用するなどの方法を検討している。

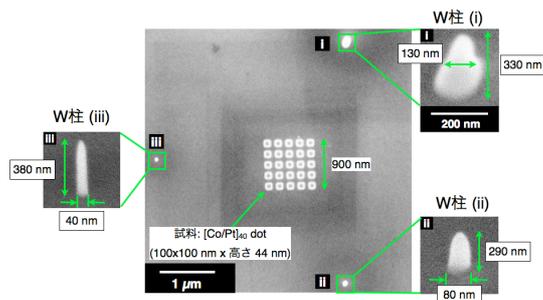


図 5. 磁気ホログラフィー測定に用いた Co/Pt ドット試料。

(2) 磁気ホログラフィー測定

磁気ホログラフィー測定のための試料には、Co/Pt 多層膜を加工した磁性体ナノドットを用いた。図 5 に試料の走査型電子顕微鏡像を示す。試料の作製にあたっては、まず、Co (0.4 nm)/Pt (0.7 nm) 多層膜を Si_3N_4 メンブレン膜 (厚さ $1\ \mu\text{m}$) 上に 40 周期成膜した。磁性膜全体の厚さは 44 nm である。表面保護および Si_3N_4 基板との整合のために、Co/Pt 多層膜の上と下に厚さの異なる Ta/Ru 層をそれぞれ成膜した。ドット加工前の磁性膜は垂直磁気異方性を示し、保磁力は 1 kOe であった。つづいて、電子ビームリソグラフィーにより多層膜を一辺 100 nm のドット形状に加工し、 5×5 個のドットを格子状に並べたものを観察試料とした。その後、別プロセスで、ドット格子の中心から $2.5\ \mu\text{m}$ の距離に、3 個のタングステン (W) 製のドットを電子ビームアシスト CVD 法によって配置した。これらの W ドットは参照光源として用いられ、磁性体ナノドットと参照光源ドットからの透過光の干渉によりホログラムが生成される。

磁気ホログラフィー測定では、X 線のエネルギーを Pt L_3 吸収端である 11.563 keV に設定した。Pt は単体では強い磁性を持たないが、Co 等の強磁性体と合金あるいは積層膜の形態をとることで、強磁性を発現することが知られている。Pt L_3 吸収端で観測される XMCD 信号は硬 X 線領域ではもっとも大きいため、このエネルギーを選択した。ホログラフィー測定では、左右の円偏光に対してそれぞれ電荷散乱イメージを取得した。その際、試料には電磁石で 6 kOe の外部磁場を膜面に垂直に印加し、飽和磁化させた。

図 6 に右回り円偏光に対するホログラムをフーリエ変換して得られた再生像を示す。左右円偏光に対する像の差分をとる前のデータなので、ドットの電荷密度を反映した像が得られている。3 つの大きさの異なる W 参照光源による再生像が観測された。最も小さな直径 40 nm の W 参照光源に対する再生像では、一辺 100 nm のドットが明瞭に分離されてお

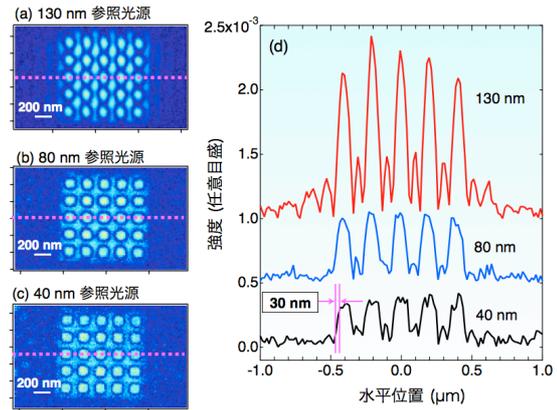


図 6. Co/Pt ドットの実空間像。(a) 130 nm, (b) 80 nm, (c) 40 nm の大きさの W 柱参照光源に対応する像。(d) 大きさの異なる参照光源に対するドット像の断面プロファイル。

り、図 6(d) に示した断面図から、空間分解能は約 30 nm と見積もられた。厚さ 44 nm の Co/Pt 膜は硬 X 線に対してほとんど透明である。11.563 keV の X 線に対する吸収減衰は 1.4%、位相変化は $0.038\ \text{rad}$ ($= 2.2^\circ$) と見積もられる。このように相互作用の小さい条件においても、図 6 に示したように良好な再生像が得られたことは意義のある成果である。

さらに、左右の円偏光に対する 2 つの像の差分を取ることで磁気像の抽出を試みた。差分像には電荷散乱像に対しておよそ 3% の磁気コントラストが観測された。外部磁場の極性を反転させると、磁気コントラストの符号も反転した。しかし、本研究に用いた Co/Pt 磁気ドット試料に対して得られる磁気コントラストは測定の S/N 比と同程度であり、より詳細な磁気イメージング測定には、S/N 比の改善が課題であることが明らかになった。なお、実験で得られた磁気コントラストの大きさは、磁気散乱振幅を考慮した計算値とよく一致している。

(3) HERALDO 法による測定精度の改善

ホログラフィー測定の S/N 比改善のために、HERALDO 法 (Holography with Extended Reference by Auto-correlation Linear Differential Operator) によるホログラフィー測定を行い、その効果を検証した。試料として、Co/Pt 多層膜を電子ビームリソグラフィー加工した磁気ドット試料 (100 nm 角、膜厚 44 nm) を用いた。磁気ドット試料に近接して、一辺 $1\ \mu\text{m}$ の三角形の Au 参照光源をリフトオフ法によって配置した。参照光源の角は、 $r = 20\ \text{nm}$ 程度の鋭角な形状である。このような広がった参照光源をもつ試料に対して

HERALDO法による解析を適用することで、点光源でなく、広がりをもつ参照光源を使っても高い空間分解能と強い回折強度による統計精度を得ることが期待できる。測定の結果、シミュレーションとよく一致する回折パターン(ホログラム)を得ることができた。微分演算子法による解析を行うことで、試料の実空間像を得る見通しである。

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1件)

1. M. Suzuki, Y. Kondo, S. Isogami, M. Tsunoda, S. Takahashi, and S. Ishio, "Hard X-ray Fourier Transform Holography Using a Reference Scatterer Fabricated by Electron-Beam-Assisted Chemical-Vapor Deposition", AIP Conf. Proc. 1365 (2011) (印刷中), 査読有.

[学会発表] (計12件)

1. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィー実験における柱状参照光源の利用", 第24回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 2011年1月10日, つくば国際会議場.
2. M. Suzuki, "Magnetic Imaging with Coherent X-rays", ICAUMS2010: International Conference of AUMS, 2010年12月7日, Lotte Hotel Jeju, Jeju Island, Korea.
3. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィーによる磁気イメージング法の開発", 原子分解能ホログラフィー研究会ワークショップ, 2010年11月14日, 東北大学金属材料研究所.
4. M. Suzuki, "Lensless Holographic Imaging using Hard X-rays", The 6th International Workshop on Nanoscale Spectroscopy and Nanotechnology (NSS6), 2010年10月28日, 神戸大学.
5. M. Suzuki, "Hard X-ray Fourier Transform Holography Using a Reference Scatterer Fabricated by Electron-Beam-Assisted Chemical-Vapor Deposition", 10th International Conference on X-ray Microscopy, 2010年8月19日, Sheraton Hotel & Towers Chicago, Illinois, USA.
6. 鈴木基寛, "放射光によるX線顕微磁気計測-マイクロビームXMCD測定と磁気ホログラフィー測定の開発", 秋田県産業技術総合研究センターセミナー, 2010年3月29日, 秋田県産業技術総合研究センター.

7. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィー法によるCo/Pt磁気ドットの観察", 日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月20日, 岡山大学津島キャンパス.
8. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィーによるパターン媒体のイメージング", SPring-8利用推進協議会先端磁性材料研究会第3回研究会「パターン媒体の先端技術開発とナノ磁気イメージングからのアプローチ」, 2010年3月16日, 東京工業大学蔵前会館.
9. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィーによる顕微磁気観察法の開発", 物性研短期研究会「顕微分光とナノサイエンスの発展」, 2010年2月22日, 東京大学・物性研究所.
10. M. Suzuki, "An attempt to magnetic imaging by hard X-ray Fourier transform holography", Developments in Coherent X-ray Methods, 2009年10月2日, University of Melbourne, Melbourne, Australia.
11. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィー法の開発", 日本物理学会第64回年次大会, 2009年3月28日, 立教大学池袋キャンパス.
12. 鈴木基寛, "硬X線フーリエ変換ホログラフィー法の開発", 第22回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム, 2009年1月11日, 東京大学本郷キャンパス.

[図書] (計1件)

1. 鈴木基寛, 「光科学研究の最前線2」編集委員会編, 強光子場科学研究懇談会, "光科学研究の最前線2", 2009年, p. 96~96.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 基寛 (SUZUKI MOTOHIRO)

財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員

研究者番号: 60443553

(2) 研究協力者

近藤 祐治 (KONDO YUJI)

秋田県産業技術センター・先端機能素子開発部ナノデバイスグループ・研究員

研究者番号: 70390903

角田 匡清 (TSUNODA MASAKIYO)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号: 80250702