

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：84502
研究種目：基盤研究(C) (一般)
研究期間：2020～2023
課題番号：20K12492
研究課題名(和文) 磁化ダイナミクス計測と3次元計測に向けた軟X線MCD顕微鏡のイメージング法開発

研究課題名(英文) Development of Imaging Methods for Soft X-ray MCD Microscopy towards Magnetization Dynamics Measurement and 3D Imaging

研究代表者
小谷 佳範 (Kotani, Yoshinori)
公益財団法人高輝度光科学研究センター・分光推進室・外来研究員

研究者番号：10596464
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)：軟X線MCD顕微鏡は軟X線ビームをフレネルゾーンプレートによって集光し、磁気円二色性を利用して磁性体の磁区構造をナノスケールで描画できる走査型のイメージング装置である。試料表面の微小な凹凸や微傾斜がエッジ効果を生み出し、X線吸収像の定量的な解析を妨げていた。そこで、4象限型のフォトダイオードによる表面立体観察イメージング法を開発した。光電子の放出角度を演算的に導出することで試料表面の微結晶のファセットや微斜面の角度をX線吸収強度と同時に検出することを試みた。この同時計測によって、磁石表面形状と磁区像の対応が明確になり、永久磁石材料の磁化反転過程の研究に寄与できるものと期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義
本研究は放射光磁気イメージング手法の高度化であり、永久磁石をはじめとする磁性体研究に広く展開できる。また、表面形状や面内磁化情報を同時計測によって得られるため、X線のビームタイムの有効利用に貢献できる。学術的には、新たな磁性体の特性解明や材料設計へのフィードバックによる短周期開発が促進され、社会的には、エネルギー効率の向上や環境負荷の低減につながる技術革新につながることを期待される。

研究成果の概要(英文)：The XMCD microscope is a scanning imaging device using a Fresnel zone plate, utilizing magnetic circular dichroism to visualize the magnetic domain of magnets at the nanoscale. Surface roughness and tilts on the small surface create edge effects that hinder the quantitative analysis of X-ray absorption images. Therefore, we developed surface topography imaging method using a 4-quadrant photodiode. By computationally deriving the take-off angles of photoelectrons, we attempted to detect the angles of microcrystal facets and tilts simultaneously with X-ray absorption intensity. This simultaneous measurement clarifies the correspondence between the magnet surface shape and the magnetic domain, promising contributions to the study of magnetization reversal processes in permanent magnet materials.

研究分野：量子ビーム

キーワード：磁気イメージング 軟X線顕微鏡 ナノ集光 画像信号処理 X線吸収分光

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

最高の磁石性能を持つネオジウム磁石は、HDD 磁気ヘッド用アクチュエーターなどの小型精密磁石や、風力発電用ジェネレーターなどの大型磁石利用が盛んで、その需要は拡大の一途にある。一方で磁石の性能の指標である保磁力や磁気ヒステリシスの角型性と結晶粒組織との関係性は十分に明らかになっていない。近年、高輝度放射光を使った磁気イメージング装置の開発・整備が進んだことにより、減磁過程での反転磁化領域の連鎖やバルク内部の影響に関する研究が進んできた状況にある。実際の材料の各種特性値は不純物の影響や拡散過程の不均一性によって、理論的に導かれるそれを大きく下回る。すなわち、減磁過程の in-situ 顕微観察は、永久磁石の高性能化や新規材料探索のための重要なアプローチとなりえる。

磁区構造の顕微観察は、ピッター法による光学顕微鏡による観察から始まり、Kerr 効果顕微鏡や光電子顕微鏡、磁気力顕微鏡(MFM)観察へと発展してきた。これらの手法はおよそ平坦に研磨した材料しか有効に測定できないという難点がある。近年では放射光 X 線を使った走査型透過 X 線顕微鏡(STXM)も登場したが、試料はサブマイクロメートル厚の薄膜に限定される。さらに、試料を加工してしまうと大幅に保磁力低下を起こすことが知られており、バルク材料とは異なる振る舞いを観察することになる。

この問題を解決するために、真空中で破断した凹凸を含む試料表面に放射光 X 線を照射し、試料電流から各種情報を取得できる走査型軟 X 線 MCD 顕微鏡を開発した(Y. Kotani et al, 2018)。特定のエネルギーの X 線を照射すると、含有元素の内殻遷移に伴って試料表面から光電子が外部に放出される。このとき、電子損失を補償する微小な電流が試料に流れ込む。これを電流アンプで信号を増幅させ、試料位置情報とともに計測することで X 線吸収イメージが得られる(図 1 左)。以上の方法により保磁力低下のない状態で磁区観察が可能になった。入射光エネルギーを変えることで元素選択イメージを、入射光のヘリシティを変化させ X 線吸収イメージの差分を取ると磁気円二色性(Magnetic circular dichroism: MCD)イメージを得られる(図 1 右)。さらに、最大出力 8 テスラの超伝導マグネットを備えており、ネオジウム磁石の着磁、減磁過程の磁区構造の変化を初めて詳細に観察した(D. Billington et al, 2018)。

真空破断面の観察では、元素選択性コントラストと磁気コントラストおよび形状コントラストが混在する。形状コントラストとは結晶粒の形状に由来する数 100 nm ~ 数 μm のラフネスが存在し、その凸部と凹部で光電子放出量が異なることに由来している。元素選択性コントラストと磁気コントラストを議論するとき形状コントラスト(すなわち凹凸情報)は既知のものとしておきたい。そこで凹凸を同時計測にて測定する検出器が必要となった。さらに、絶縁性試料や電圧効果を示す機能性材料を測定対象としたとき、試料電流を計測することはできない。この場合、シリコンドリフトディテクタを使った蛍光収量法が検討されるが、フレネルゾーンプレートなどの集光光学系が試料に近接配置されている場合、ディテクタを設置する空間的余裕がなく、集光光学系に干渉しない構造の検出器の開発が必要となる。

2. 研究の目的

本研究では、最も試料に近い集光素子である高次光制限アパーチャ(OSA)の代わりに、光電子または蛍光 X 線を捉えるための検出器を設け、X 線吸収イメージング法を開発する。フレネルゾ

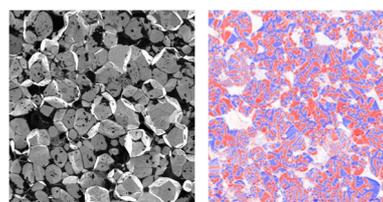


図 1. ネオジウム磁石の破断面の X 線吸収像、入射光エネルギーは Fe-L₂ 吸収端となる 708 eV とした(左図)。円偏光を使うことで表面の磁化が可視化できる(右図)。視野サイズはいずれも 60 μm x 60 μm 。

ーンプレートの透過率と回折効率の乗算は数%程度であり、これに蛍光 X 線の励起効率が乗算されて収量は高くないと予想されるが、数 10 pA の電流量があればイメージングの検出器として代替可能となる。また、蛍光 X 線収量は試料の電位に依存しないため、試料への配線や電圧、電流印加が可能となる。シリコンフォトダイオードをセンターホール付きの 4 象限素子として分割し、それぞれのエレメントの電流値を独立して計測する。その後、演算を施し、凹凸情報に置き換えが可能かどうかを検討する。本研究で整備する 4 象限検出器の配置概略を図 2 に示す。入射 X 線はフレネルゾーンプレートで回折される。そのうち 1 次回折光のみが 4 象限検出器のセンターホールを抜けることができ、試料に照射される。図 2 の下図では試料側からみた 4 象限検出器を示している。傾斜した結晶面からは光電子または蛍光 X 線が、主としてその法線方向に放出される。

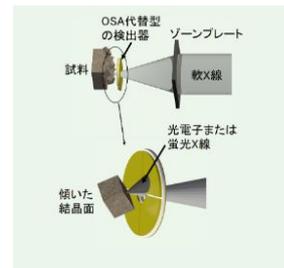


図 2. OSA 位置に設置した 4 象限検出器

試料から放出される光電子は、運動エネルギーをもった光電子と、エネルギーを失った二次電子から構成される。試料と検出器の間に電位差を与えることで電子の放射角が変化し、傾斜角分解能を変化させることができる。他方、蛍光 X 線の場合は引き込み電圧によらず等方的に拡散するが、試料自らの遮蔽及び吸収によって拡散方向に偏りが生じる。この差を捉えることによって試料の微視的な傾斜方向とその角度を割り出せるものと期待できる。

3. 研究の方法

電子検出のための検出器の検討と製作を行った。検討の結果、マイクロチャンネルプレート (MCP) は電子増倍のための高電圧空間が必要なため厚みがあり、試料とゾーンプレート間の僅かな空隙に挿入することが困難であると考えた。フォトダイオード (PD) は MCP と比べてシンプルな構成であり、電子と蛍光 X 線の両方を検出できるメリットがある。そこで、OSA を組み込んだ 4 象限 PD を作製した。図 3 は OSA 一体型 4 象限 PD と試料の配置の様子である。試料表面から見た立体角の約 20% を PD が覆うことになる。

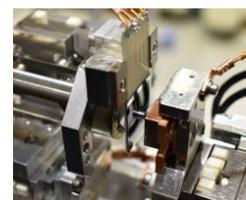


図 3. 高次光制限アパーチャと一体化させた 4 象限 PD

試料バイアスと外部磁場が存在する環境で、運動エネルギーを持った電子がどのような軌跡を描くのかをシミュレーションした。その結果、試料バイアスの増減によって、放出する電子線の放出角を制御できることが分かった。これは角度分解能を選択できることを示唆している。一方で、外部磁場については 0.01 テスラ以下の弱い磁場であっても、磁力線にまわりつくような軌跡を常に描くことが分かった。これは軟 X 線の低運動エネルギー電子では磁場方向に強く束縛され、電子放出角の検出ができないことを示している。

放射光を使った実証実験では、ネオジム磁石を約 $1.0 \times 0.5 \times 10 \text{ mm}^3$ の棒状に加工し、これを超高真空状態の試料準備槽にて破断し観察表面を得た。単素子型の PD を用いて集光光学系の調整を実施した後、試料測定槽に移送、ピエゾステージ上に設置した。無磁場、室温での試料の X 線吸収コントラスト像および MCD 像を取得した。入射光エネルギーは Fe- L_3 吸収端エネルギーである 707.9 eV とした。入射光のエネルギー分解能は $E/\Delta E=3,000$ とした。このとき、見積もられたビームサイズは 100 nm である。MCD 像は右円偏光と左円偏光での X 線吸収像の差分として算出した。4 象限 PD の各象限の信号は、4 台の独立した電流アンプで増幅され計測システムによって収録された。各象限間の信号強度の差異が微結晶の傾斜角と相関がある。さまざまなサ

イズや方位をもった結晶粒で検証するため、視野領域を変えながら X 線吸収コントラスト像と同時計測でデータ収録した。さらに、感度や分解能は光電子取り込み立体角に依存する。よって、試料と 4 象限フォトダイオードの距離、バイアス電圧、外部磁場に依存すると予想され、これらのパラメータを変更しながら測定した。図 4 は外部磁場とバイアス電圧を印加しないときのネオジウム磁石破断面の X 線吸収コントラスト像と 4 象限 PD による電子収量像である。電子収量像ではそれぞれ各象限に向けた面が明るく描画されていることが見て取れる。なお、4 象限電子収量像の空間分解能は、X 線吸収コントラスト像と比較して同等である。



図 4. 試料電流による X 線吸収コントラスト像と 4 象限 PD による電子収量像。
視野サイズはいずれも $60\ \mu\text{m} \times 60\ \mu\text{m}$

4. 研究成果

これらのデータの感度補正、BG 処理を施した後、微結晶の傾斜角を求めた。図 5 に示すように、PD のエレメントに向いている傾斜面からの信号は強く、反対向きの傾斜面の信号は弱い。PD の方位に注意しながら積分し、積分画像の総和を取ることによって高さ方向の分布を得ることができた。この方法では高さの絶対値は得られないものの、微結晶がおおむね等方的な形状と仮定すると、2 次元図における結晶サイズから高さの規格化が可能である。

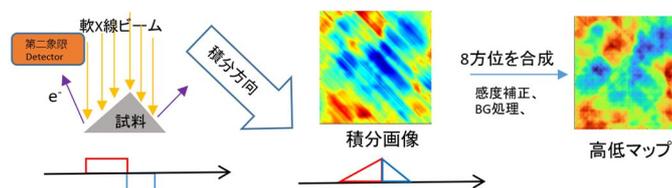


図 5. 高低マップを得るまでのデータ処理方法の概念図。

その結果、X 線吸収像と同じ視野領域にて高低マップを得ることに成功した(図 6)。

また、実験室系のレーザー共焦点顕微鏡によるプロファイル計測で得られた高低情報との比較を行ったところ、良い一致を示した。(図 6 右)。以上から、凹凸情報に変換することで、表面 3 次元モフォロジー像を構築することに成功したといえる。

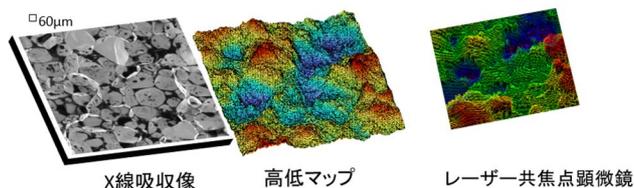


図 6. X 線吸収像(左)と演算された高低マップ像(中央)、およびレーザー共焦点顕微鏡による高さプロファイル図(右)。視野サイズはいずれも $60\ \mu\text{m} \times 60\ \mu\text{m}$ 。

本研究で開発した 4 象限検出器は放射光施設の軟 X 線 MCD 顕微鏡に設置するものであり、安定稼働後には共用利用実験でも活用していくことを予定している。この軟 X 線 MCD 顕微鏡は 2022 年に 3GeV 高輝度放射光施設ナノテラスに移設し、2024 年から運用を開始した。同施設の高輝度の軟 X 線ビームを利用することで、2022 年度と比較して数 10 倍以上の信号強度にて測定が可能となることが期待される。このためのビームラインの立ち上げ、ビームラインの光軸調整、軟 X 線 MCD 顕微鏡の組立て、フレネルゾーンプレートの集光調整を実施した。さらに、磁場中では磁性材料の表面の磁化状態が、面内磁化から面直磁化へ、あるいはその逆へと変化が起こることが予想される。これを可視化して捉えることのできるように、外部磁場となる超伝導マグネットの設置、アライメントおよび軟 X 線 MCD 顕微鏡との連結作業を行った。また、入射光エネルギーを変えながら測定できるようにビームラインの分光器などと連動してデータ取得できるソフトウェア群も作成した。以上の取り組みによって、高輝度軟 X 線の準備および軟 X 線 MCD 顕微鏡の

立ち上げに約一年を費やしたが、本研究の微小な信号から表面形状を描き出す手法や磁化変化の僅かな信号をとらえるには軟X線MCD顕微鏡の移設は有効な選択であったと考える。今後、放射光実験を再開し、本研究手法のユーザー利用を促進し、さらなる展開を図っていく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 小谷佳範, 鈴木基寛, 中村哲也
2. 発表標題 軟X線MCD顕微鏡による磁石表面形状と磁化分布の立体観察の試行
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第64回シンポジウム
4. 発表年 2021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
---------	---------