

実習 円偏光軟X線による磁気材料解析 (BL25SU)

(財) 高輝度光科学研究センター 中村 哲也、脇田高徳

1. はじめに

私たちの身の回りには様々な**磁気材料**が用いられ現代生活を支える基幹材料となっています。大きく分類して、磁石の用途は(1)永久磁石、(2)磁気記録、(3)その他(トランス、磁気シールドなど)に分類されます。(1)の永久磁石の場合、例えば、乗用車には1台あたり30ヶ所以上の部品に使われています[1]。他にも、携帯電話、医療用MRI、そして、パソコンなど、身の回りには磁石を利用した製品があふれています。特殊な用途では SPring-8 の挿入光源にもネオジウム磁石(Nd-Fe-B 合金)と呼ばれる現在知られている磁石のなかで最強の磁石が用いられています(このネオジウム磁石は佐川博士の発明品です)。一方、(2)の「磁気記録」は情報化社会に欠かせない先端技術です。ハードディスク、MO、MD、フロッピーディスクなど、全て磁気材料です。近い将来には MRAM と呼ばれる磁気を利用した高速大容量ランダムアクセスメモリが大規模な市場となることが確実となっていますので、今後ますます磁気記録方式による情報ストレージに依存した情報化社会を展開することになりそうです。

さて、本実習は SPring-8 の軟X線ビームライン BL25SU を利用して**ハードディスクドライブ**(以下、HDD)に用いられる磁性材料を研究対象にして実施します。本稿では、「2. 磁気ディスクと磁気ヘッド」、「3. 磁性の基礎」、「4. 軟X線磁気円二色性」、「5. 光電子顕微鏡」の順で SPring-8 夏の学校 : BL25SU 実習に必要な知識を解説することになります。

2. 磁気ディスクと磁気ヘッド

ハードディスクを構成する部品の中で、「**磁気ディスク**」は記録を保存する役割でデータの貯蔵庫です。また、磁気ディスクに記録した情報を読み出したり、新しい情報を書き加えたりする役割を果たすのが「**磁気ヘッド**」です(図1参照)。この2つの部品がハードディスク磁性材料開発の中心的な対象で、本実習でも磁気ディスクと磁気ヘッドについて磁気測定の実習を行います。実は、HDD にはもう一つ重要な磁気材料が使われていますが、そちらは実習の際に実機を分解して確認してみましよう。

磁気ディスク開発では、単位面積あたりの記録情報量(記録密度)の向上が重要です。記録密度が上がれば、HDD の大容量化が進むばかりでなく、同じ記録容量の HDD を小型化することができます。図2のように、情報が記録された磁気ディスクには1ミクロン以下の非常に小さな磁石が情報の内容によって決まる配列に従って並んでいます。この状態を安定に保つことで大切なデータを保存してい



図1 ハードディスクの構造 [2]

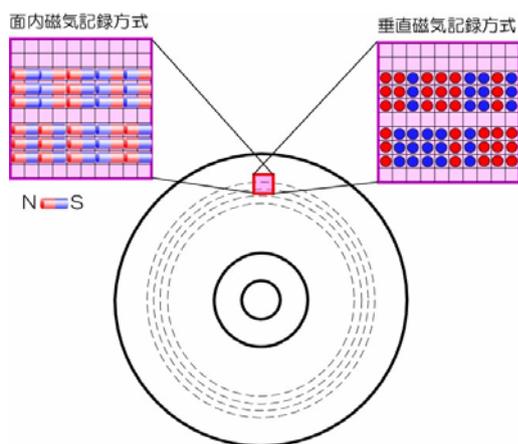


図2 磁気記録にはマイクロ磁石をディスク面に横たわって配列させる「面内磁気記録方式」とマイクロ磁石がディスク面に垂直に配列させる「垂直磁気記録方式」があります。

電気抵抗が小さくなる現象です。GMR ヘッドには GMR 効果を利用した「スピンバルブ」という概念が用いられて素子化されています。スピンバルブ型 GMR 素子は図3（上）に示すように、反強磁性層と強磁性層で構成されるピン層と、強磁性層のみで構成されるフリー層で非磁性層を挟んだ構造をしています。ピン層の強磁性層は反強磁性層との交換結合により磁化の向きが固定されており、フリー層の磁化の向きを変えることにより GMR 効果を示します。ここで、固定される理由は実習の内容に深く関係しています、意味がわからなくても良いので読み進んでください。一方、フリー層は、外部からの磁界によって容易に磁化の向きが変わるような磁気特性をもった磁気材料で出来ています。つまり、磁気ディスク上のマイクロ磁石によってフリー層の磁化の向きが変化し、そこで生じる GMR 効果をヘッド素子の抵抗値の変化として検知することで記録された内容を読みとっています。ちなみに、「スピンバルブ」は、図3（下）に示すようにフリー層の磁化の向きを制御することによって、あたかもバルブを開閉するように流れる電流の量を制御できることからそう呼ばれています。

では、磁気ヘッドにはどのような磁性体が使われているのでしょうか。まず、フリー層に NiFe 合金、ピン層には FeCo 合金が使用できます。一方、反強磁性層には MnPt 合金などが一般的です。さらに、非磁性層には Cu が用いられます。つまり、図3の上の層から順に、MnPt / FeCo / Cu / NiFe のような構成になります。ここではエッセンスとなる構成だけを示しましたが実際の積層構造は10層を超え、各層の役割も高度に複雑となっています。

るわけです。したがって、記録密度を上げるためには、ディスク上に出来るだけ小さな磁石を作り、それらを如何に安定して密集させるかという技術的開発が必要です。

一方、記録した情報を読みとるには、磁気ディスク上のマイクロ磁石がどの方向に向いているかを識別して、コンピュータが理解できる信号（10011....、など2進数のビット信号）に変換する必要があります。この役割を担うのが、磁気ヘッドです。GMR 効果を利用した磁気ヘッドによる読みとり原理が約10年前に実用化されてから読みとり感度が大きく上昇し、現在は GMR ヘッドが主流で用いられています。GMR 効果とは電流の流す方向がマイクロ磁石の N→S の方向(正確には、磁性体のスピンの向き)と同じ場合には電気抵抗が小さく、その逆の場合には

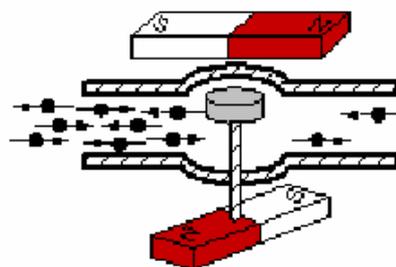
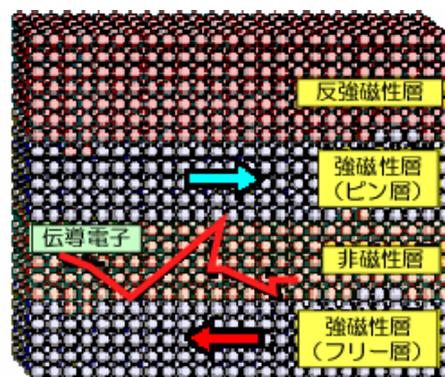


図3 スピンバルブ磁気多層膜の膜構造と各層磁性の役割 [3]。上図の場合、伝導電子はフリー層で強く散乱され、抵抗となります。

3. 磁性の基礎

まず、材料の磁性の起源について簡単に説明します。一般に磁石を細かく粉碎していても各破片は同様に N 極と S 極をもった磁石になります。究極には磁石の最小単位である原子磁石にたどり着きます。図 4 のように、古典物理学的なイメージでは、電子は原子核の周りを回っている（公転）と同時に自転をしています。まず、電子が公転すると

軌道内に電流が流れたのと同じことになり、軌道の内側に磁界が発生します。この磁界を、**軌道磁気モーメント**と呼びます。一方、電子を表面に電荷が一樣に分布している球体と仮定すると電子の自転によって電子の赤道周りを電流が流れたことになり、この電流によって発生する磁界を**スピン磁気モーメント**と呼びます。一般に原子核は多くの電子をまとっています。内殻電子の磁気モーメントは**パウリの排他律**によって相殺されてしまいますので、実際に磁性に寄与するのは**不対電子**のみとなります。すなわち、不対電子をもつよ

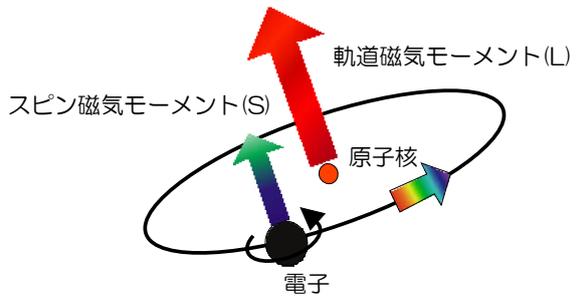


図 4 磁性の起源は原子磁石にあります。この図では、軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントは同じ方向のベクトルとして描いてありますが、元素の種類や不対電子の個数によって結合方向が変化します。また、隣接する原子との電子の混ざり方によって大きさのバランスが変化します。

うな元素だけが原子磁石になり得るのです。Mn, Fe, Co などの不対電子は主に 3d 電子軌道に存在しますので、磁性研究では 3d 電子状態を調べることが重要となります。

では、原子磁石について学んだところで、物質中における原子磁石の配列について説明します。物質のもつ磁性のうち代表的なものは、1) 反磁性、2) 常磁性、3) 強磁性、4) 反強磁性です。以下に主要な性質を列挙すると、次の 1) ~ 4) のようになります。他にも磁性を研究する上では知っておかなければならない磁気構造がありますが、ここでは割愛して代表的なものにとどめました。

- 1) **反磁性**：外部から磁場を印加したときに磁場と反対向きに磁化する物質です。磁石を近づけたときに磁石に反発する物質と考えてもよく、物質が超伝導状態になると**完全反磁性**という性質を持つようになります。磁石を強く反発します。
- 2) **常磁性**：外部から磁場が印加されたときに磁場の方向に磁化を発生する物質です。磁場を切ると磁化がゼロになるような性質を持ちます。原子個々の磁気モーメントは磁場が印加されないときに無秩序な状態にあり、熱的にも揺らいでいます。
- 3) **強磁性**：常磁性と異なり、磁場が印加されずとも自発的に磁化を有する物質です。一般に磁石と呼ばれるものは強磁性体です。鉄は代表的な強磁性体で、ferromagnetic の名前の由来でもあります。鉄がそうであるように外部磁場がないときには永久磁石として働きませんが、それは静磁エネルギーを下げるために「**磁区**」を形成しているからです。
- 4) **反強磁性**：近接する磁気モーメントが反対向きに対をなして整列し、静磁エネルギーを下げる磁気構造をもつ性質です。対を成す磁気モーメントが異種原子同士の場合打消しが不完全となり、強磁性に似た性質を示す場合には**フェリ磁性**と呼びます。

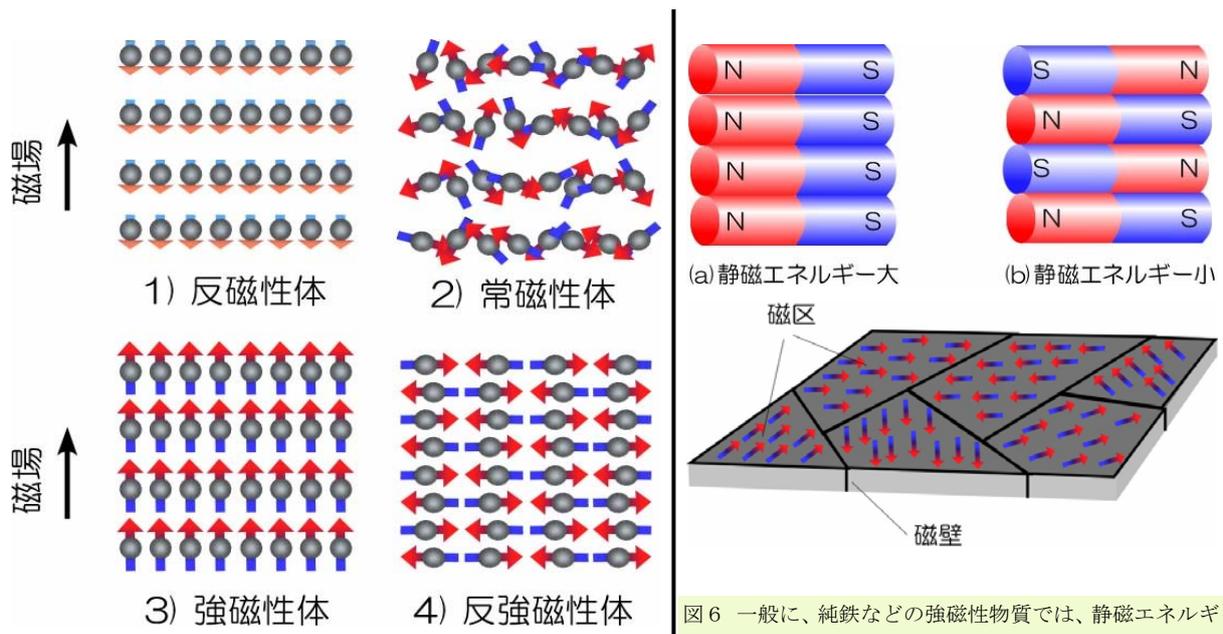


図5 反磁性体、常磁性体、強磁性体、反強磁性体の磁気構造の模式図。反磁性体は印加した磁場を打ち消す方向に磁場に比例した強さの磁気モーメントが誘導されます。常磁性体の磁気モーメントは熱的に絶えず揺らいでいますので、図は瞬間のスナップショットに相当します。

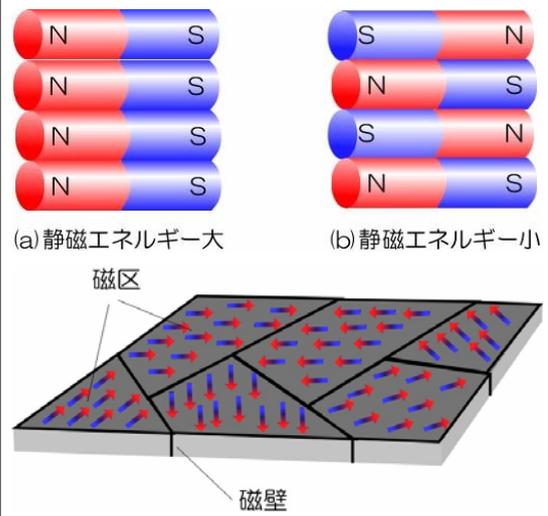


図6 一般に、純鉄などの強磁性物質では、静磁エネルギーを下げるために磁区を形成します。磁場を印加すると磁壁が移動することによって磁場方向に沿った磁気モーメントが並んでいる磁区が拡大します。磁場が十分大きい場合には単磁区となります。しかし、磁場印加をやめると静磁エネルギーを小さくするように、再び磁壁が移動し磁区を形成します。

図5には、1)~4)の磁気構造に対応する磁気モーメントの配列を模式化して示しました。また、強磁性体の場合には、全体の静磁エネルギーを下げるために図6のような「磁区」を形成します。磁気ディスクの場合には目的の場所に目的の大きさの磁区を人工的に作り出すことによって情報の記録保存を行っています。磁気ディスクの場合には、強制的に磁区を形成するので静磁エネルギーとして必ずしも得にはなっていませんが、磁気異方性の利得を利用したり、磁壁が動きにくくしたりする工夫をして静磁エネルギーがより小さい磁気構造に移行するのを防ぎ、記録したデータを保持しています。

さて、本実習に必要な磁性の基礎として、もうひとつ、「磁気ヒステリシス曲線」について紹介しておきます。磁気ヒステリシス曲線は、図7のように磁場を変化させたときに磁化がどのように変化するかを示した曲線です。磁気ヒステリシス曲線は、磁化の温度依存性とともな磁気材料の特性を研究する上で、もっとも基本的な情報となります。図7の赤い線について右上の状態から説明を開始します。右上では、磁場が十分に大きいために全ての磁気モーメントが一方向に揃って磁区は見られません。これ以上大きい磁場を印加しても磁化の状態はほとんど変化しません。では、磁場を少しずつ弱くしていきます。磁場を弱くしていくと、やがて静磁エネルギーを低くしようとして磁区を形成するようになります。しかし、結晶などの特定方位に磁気モーメントが揃いやすい性質（磁気異方性）が大きい場合や、磁壁の移動が妨げられる要因がある場合には、磁場をゼロにしても磁化はゼロになりません。その後、逆向きの磁界を増やしていくと磁化も減少し、反対向きの磁区が体積を増やしていきます。そして、逆向きの磁場が十分に大きくなったところで、全ての磁気モーメントが磁場に沿って整列するようになります。逆に、磁場を増やしていったときには、原点对称の経路をたどりますの

で、結果としてループを描きます。このような振る舞いは強磁性体の代表的な特徴です。一方、青線は純鉄のように磁場をゼロにすると静磁エネルギーを下げるために磁区を形成して、ほとんど磁化が消失するような強磁性体の磁気ヒステリシス曲線の例を示しています。

一般に、磁気ヒステリシス曲線は振動試料型磁力計や SQUID 磁化率計によって計測されます。これらの測定では試料片全体の磁化を得ることができます。実習では、円偏光軟 X 線を用いた磁気光学効果を利用して試料に含まれる特定元素だけに注目した磁気ヒステリシス曲線「元素選択磁気ヒステリシス曲線」を測定します。なぜ、元素別の情報を得ると良いのでしょうか、実習で説明しますが、可能ならば予習として各自考えてみてください。

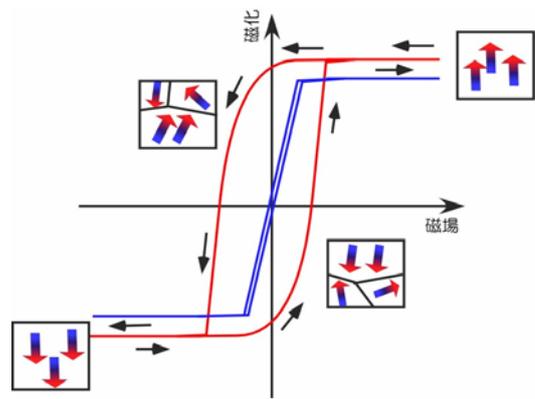


図7 磁気ヒステリシス曲線の模式図です。磁気ディスクに使われる磁性体や永久磁石は赤線のように、磁場をゼロにしても磁化が残ります。これを残留磁化と呼びます。一方、青線は純鉄のように磁場をゼロにすると磁区を形成してほとんど磁化が残らない物質を示しています。

4. 軟 X 線磁気円二色性

光を物質に照射すると、光は反射されたり、透過したり、あるいはその物質に吸収されたり散乱したりします。このような光と物質との相互作用は、様々な形で物質研究に応用されています。図8に示したように、磁化した磁性体に円偏光を入射すると、右回り円偏光と左回り円偏光で光の吸収強度が異なる場合があります、これを磁気円二色性 (MCD: Magnetic Circular Dichroism) と呼びます。本実習では、軟 X 線のエネルギー領域で観測される、「軟 X 線磁気円二色性」の実験を行いますので、そのことについて解説していきます。以下、軟 X 線磁

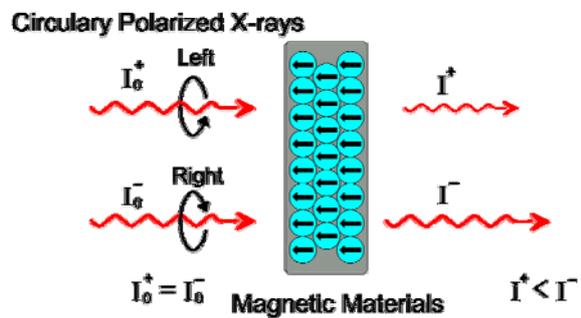


図8 X線磁気円二色性の概念図。I₀ は入射 X 線強度、I は透過 X 線強度、I₀ と I に付した +, または, - の符号は、それぞれ、左回り円偏光、右回り円偏光であることを表しています。

気円二色性を SXMCD (Soft x-ray MCD)、または、単に MCD と書くことにします。

さて、MCD を測定するためには、当然のこと円偏光が必要です。円偏光は光（電磁波）の電場の振動面が光の進行（電磁波の伝搬）とともに回転する光です。左回り円偏光 (h_+) と右回り円偏光 (h_-) は、量子力学ではフォトンのスピンの、それぞれ、+1, -1 であることに相当します（左回り円偏光と右回り円偏光を、 h_+ と h_- : 「ヘリシティ」で表すこともあります）。物質に軟 X 線を照射したとき、軟 X 線のエネルギーが内殻電子と価電子帯のエネルギー準位差に等しいエネルギーを持っていると図9の例で示したような内殻電子の共鳴励起、すなわち、共鳴吸収が起こります。2p 軌道(L 殻)から 3d 軌道へ

の遷移は、光学選択則に従って方位量子数が1だけ変化 ($\Delta l=1$)する双極子遷移です。また、L殻からの励起をさしてL吸収と呼ばれます。MCDはこのような共鳴吸収条件で強く観測されます。

ここまで準備して、Mn, Fe, Co など、3d 遷移金属の場合に観測される SXMCD の原理について説明します。量子力学によれば2p 内殻軌道は「スピン・軌道分裂」しています (図10参照)。2p 内殻軌道には合計6個の電子が存在しますが、状態のスピン各運動量 (s) や磁気量子数 (m_l) に依存して状態に含まれる電子の個数が異なります (図11)。フォトンスピンの含めた角運動量保存則と量子力学で扱うクレプシュゴルダン係数の計算からL3 吸収端においては左回り円偏光 (h_+) は $s = +1/2$ (上向きスピン) の2p 内殻電子を優先的に励起し、逆に、右回り円偏光 (h_-) では $s = -1/2$ (下向きスピン) の内殻電子を多く励起しようとします。この事情はL2 吸収端では符号が反転します。

左回り円偏光で上向きスピンを励起しようとする確率と右回り円偏光で下向きスピンを励起しようとする確率は全く同じになりますので、同じように励起されたのではMCDは観測されません。磁性体の場合には励起先の価電子帯において上向きスピンと下向きスピンの占有率に差が生じています。すなわち、「スピンの空席」に差をもっています。磁性体の場合には下向きスピンの数が少ないので、(1)式で定義されるMCDは、(例外を除き) L3 吸収端では負符号、L2 吸収端では正符号の信号強度を与えます。

$$\text{MCDの定義: } \Delta\mu(E) = \mu_+(E) - \mu_-(E) \quad \text{----- (1)}$$

ここで、 $\Delta\mu(E)$ はMCD、 $\mu_+(E)$ 、 $\mu_-(E)$ は、それぞれ、 h_+ 、 h_- の偏光に対する吸収係数で、吸収係数は、入射X線の強度を I_0 、透過X線の強度を I として、(2)で表されます。

$$I = I_0 \exp(-\mu t) \quad \text{----- (2)}$$

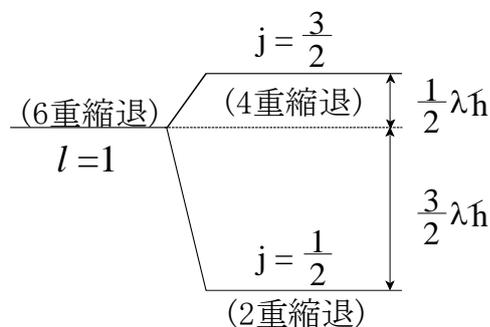


図10 2p 内殻のスピン軌道分裂ダイアグラム。

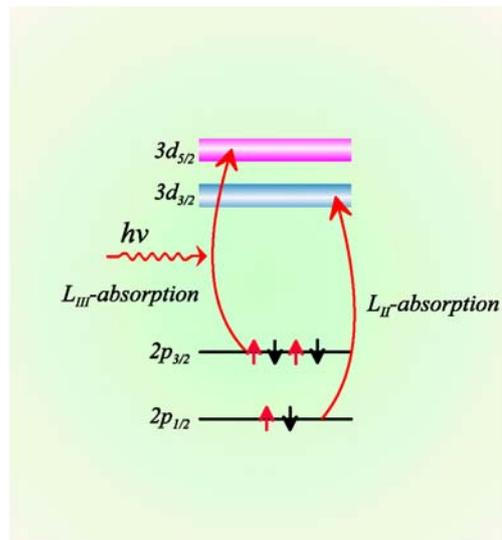


図9 3d 遷移金属のL吸収における双極子遷移の様子。

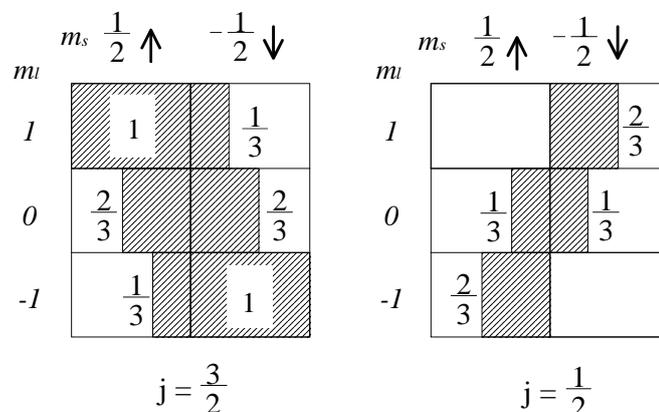


図11 2p 内殻の各 m_l , m_s に対する状態の電子占有数

では、実際に MCD スペクトルを参照してみましょう。図 1 2 は、 $Tb_{18}Fe_{65.3}Co_{16.7}$ アモルファス合金 (MO ディスク材料) の Fe $L_{2,3}$ 吸収に対する MCD 測定の結果です。図 1 2 で、707eV と 719eV あたりの吸収曲線の立ち上がりを吸収の敷居値という意味で、「吸収端(absorption edge)」と呼んでいます。一般に、図 1 2 は、「Fe $L_{2,3}$ 吸収端における MCD スペクトル」というような呼び方をします。

SXMCD は、1991 年に C.T.Chen らによって Ni $L_{2,3}$ 吸収端で初めて観測されました[4]。その後、1992 年~1993 年に「磁気光学総和則」が P. Carra と B.T.Thole によって提案され、その後の MCD が普及し発展する大きな原動力となりました[5, 6]。磁気光学総和則は、 L_3 , L_2 吸収端における共鳴吸収強度と MCD の積分値を用いて、その元素の軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントを導出するための公式のようなものです。実は軌道磁気モーメントを直接的に評価できる実験手法は限られており、実験と解析の簡便性が高い点で MCD+磁気光学総和則は軌道磁気モーメントを含めた磁気モーメント評価に極めて有効なツールとなっています。磁気光学総和則については、本来、MCD の解説書であれば詳細な説明を避けて通れないところですが、本稿ではスペースの関係から具体的な説明を省き、実習当日に補足します。

ここまでで、予備知識が用意されましたので、いよいよ本題に入ります。磁気光学総和則を用いると磁気モーメントの定量的な評価ができることを説明したが、本実習では次の(3)式の関係を利用した実験を行います。

$$\Delta\mu \propto P_c M \cos \alpha \text{ ----- (3)}$$

つまり、 $\Delta\mu$ が、X線の円偏光度(P_c)、試料磁化(M)、試料磁化とX線波数ベクトルのなす角(α)の余弦に比例することを表しています。(3)式は、磁場誘起の相転移がある場合や、温度変化などで電子状態が変化する場合には正確ではありませんが、磁壁移動による磁化変化では実用上その心配は不要となります。 P_c の変化は無視できるほど小さいので、 $\Delta\mu$ は $M \cos \alpha$ に比例する結果となり、これは一般の磁化測定と同じ強度変化を与えることになります。ただし、MCD は元素固有の吸収端で観測されるので、元素を特定した情報になります。MCD を使って得られる磁化と同様の情報を「元素選択磁化 (ESM: Element Specific Magnetization)」、また、そのヒステリシスを「元素選択磁気ヒステリシス (ESMH: Element Specific Magnetic Hysteresis)」と呼んでいます。図 1 3 は、ESMH の測定例です。

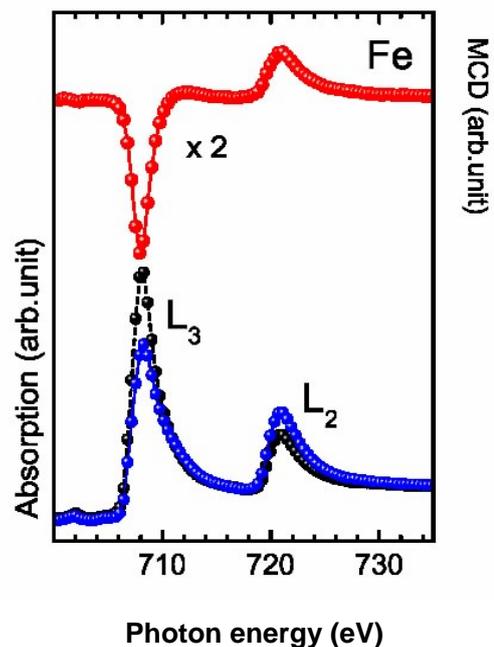


図 1 2 $Tb_{18}Fe_{65.3}Co_{16.7}$ アモルファス合金薄膜の Fe $L_{2,3}$ 吸収端における MCD 測定結果。青線は、 $\mu+$ 、黒線は $\mu-$ 、赤線が MCD ($\Delta\mu$) を表す。

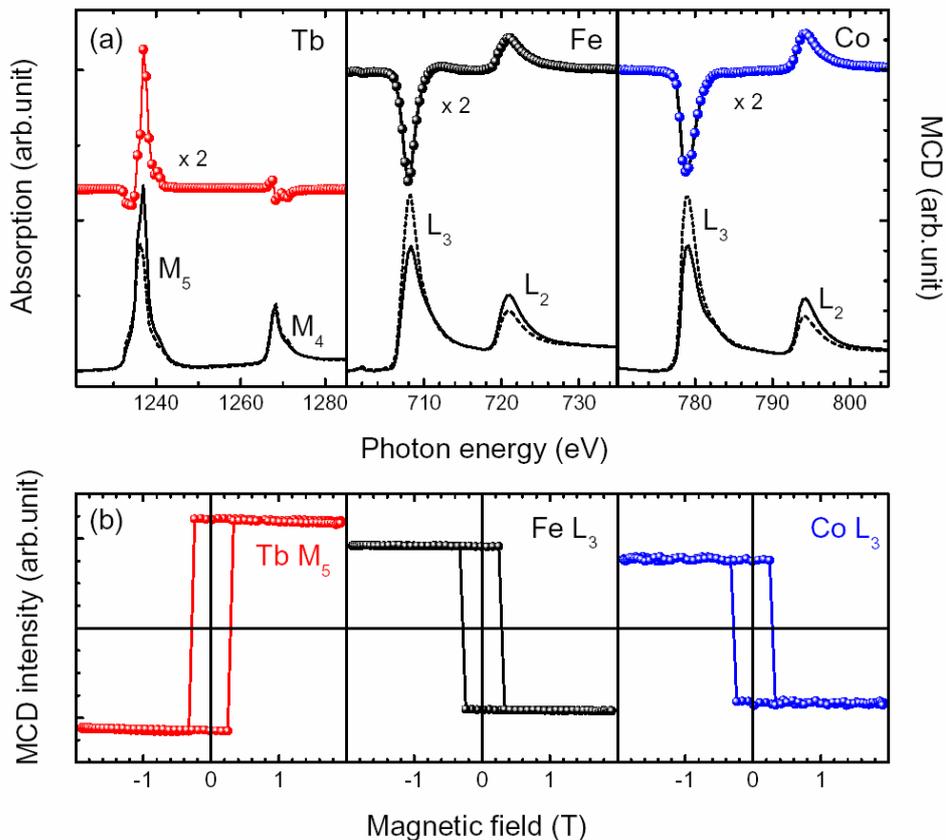


図 1 3 Tb₁₈Fe_{65.3}Co_{16.7}アモルファス合金薄膜の Tb M_{4,5} 吸収端、Fe L_{2,3} 吸収端、Co L_{2,3} 吸収端における MCD スペクトル (上段 a) と、入射 X 線エネルギーを MCD 強度最大となる条件に固定して MCD 強度の磁場依存性を測定した結果 (下段 b)。下段が ESMH です。元素によって符号は逆転していますが、図 7 に示したのと類似の磁気ヒステリシス曲線が元素ごとに得られていることが分かります。

実習では、(株) 日立製作所の協力を得て、図 1 4 の模式図で示す構造の磁気ヘッド用多層膜の MCD スペクトルと ESMH 測定を行います。この測定で最も重要な課題は、反強磁性層 (MnPt) と強磁性層 (CoFe) の間でどのような磁気相互作用が生じているかを明らかにすることです。

次に、実験について説明します。図 8 では MCD を透過法で測定する場合について説明しましたが、軟 X 線の透過能は普通の X 線にくらべて格段に低いので、図 1 4 の膜に透過法を用いることは不可能です。したがって、軟 X 線 MCD の実験では「全電子収量法」と呼ばれる方法が多く用いられます。全電子収量法では、吸収された X 線の強度が放出される光電子量に比例すると近似することで(2)式の I を測定します。つまり全電子収量法では、内殻吸収される光子数と内殻ホール生成量が等しく、また、内殻から励起された電子は全て光電子となって固体表面から飛び出すということを想定します。慣習として μ の求め方も $\mu = I/I_0$ に変わり、透過法の場合と異なります。

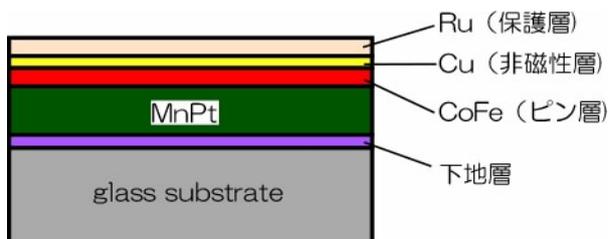


図 1 4 実習に用いる磁気ヘッド用多層膜の膜構造。今回は研究用試料のためフリー層は省略しています。

図 1 5 に BL25SU で用いられている全電子収量法の模式図を示します。入射強度は集光ミラーでの全電子収量によって測定します。ミラーや試料の表面から光電子が放出されると、表面が正に帯電しますので、そのチャージに相当する電荷をアースから自然に補います。その電流量を測定すると放出された光電子量を知ることができます。電流の大きさはナノアンペアオーダーと非常に微弱であるために、電気ノイズの混入にも注意した測定が必要です。

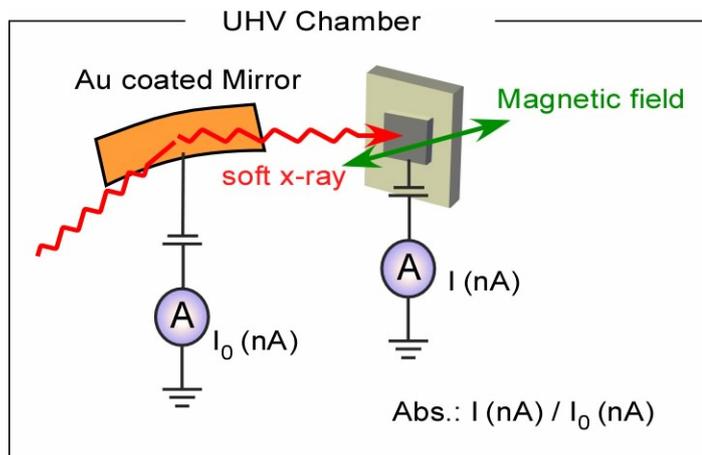


図 1 5 BL25SU における MCD 測定で用いられる全電子収量法の模式図。

MCD に関する解説の最後に、BL25SU における SXMCD 測定装置について紹介しておきます。図 1 6 は MCD 測定室チャンバーの模式図です。この装置では試料に最大で 1.9 テスラの強さの磁場を印加することができます。また、図 1 7 は装置の外観です。本稿では BL25SU における円偏光の発生方法について述べませんでした。円偏光の発生と左、右回り円偏光の切り替えについては当日解説します。

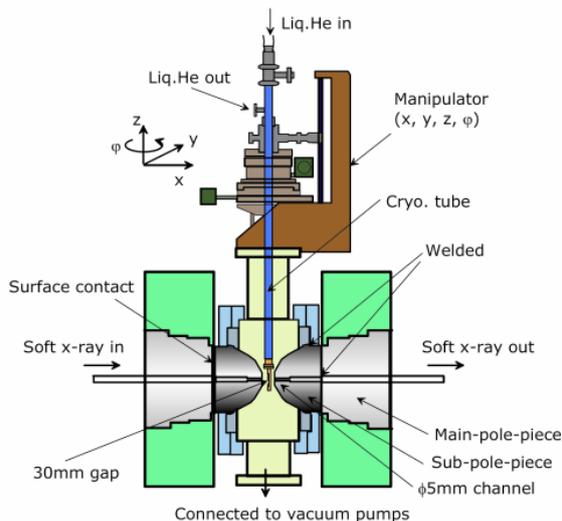


図 1 6 BL25SU における MCD 測定装置、測定チャンバーの断面模式図。

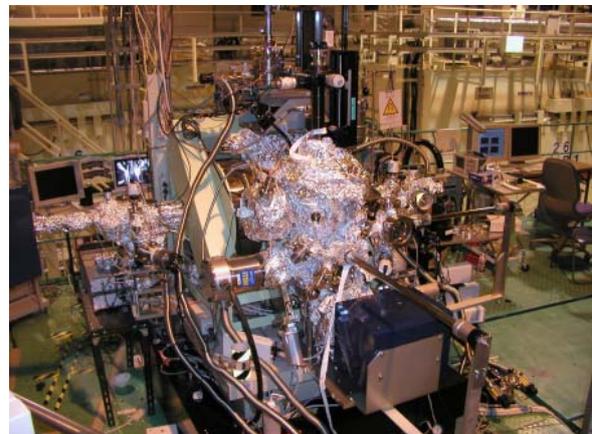


図 1 7 BL25SU における MCD 測定装置外観。

5. 光電子顕微鏡

光電子顕微鏡, PEEM (photoemission electron microscope)は, 試料の表面の X 線吸収強度の二次元的な分布をナノスケールの空間分解能で表示することができる装置です. さらに, 前出の X 線吸収の磁気円二色性を利用することで, 後述するように磁性体の磁区構造を可視化することができます. 特に複数の元素からなる磁性体については, 元素ごとに磁気状態をマッピングすることが可能です. この実習では, ハードディスク媒体を試料として, PEEM による磁区観察を実地に学ぶことを目的とします.

<PEEM とは>

PEEM とは, 試料表面に試料の仕事関数よりも大きなエネルギーをもつ光を照射した時に放出される光電子を電子レンズ(静電型, 磁場型)により拡大投影することで, 試料表面の単なるトポグラフィ(表面起伏)の観察だけではなく, 元素, 電子状態, 磁気状態の空間分布観測が可能な顕微鏡装置です(後出の図 20 を参照). ごく簡単に動作原理を説明すれば, 通常, 試料と初段レンズ(アノード)との距離は数ミリで, そこに 10 kV 以上の高電圧を印加することで電子を引き出します. そして対物レンズおよび投影レンズでマイクロチャンネルプレート(MCP)上に拡大, 結像され, MCP で増幅後, 蛍光スクリーン上に投影された画像を CCD カメラで撮像します.

<PEEM の歴史>

光を照射するかわりに, 低エネルギーの電子線を試料表面に垂直に入射させ, 弾性散乱された電子線を PEEM と同様の電子レンズで結像させる装置を低エネルギー電子顕微鏡(low energy electron microscope, LEEM)と呼びます. LEEM と PEEM は結像部(電子レンズ)が同じですから, 試料表面に光を当てることさえできれば, LEEM 装置を PEEM として使用することも可能です. LEEM および PEEM は, 低エネルギーの電子の像を得る顕微鏡(いわゆる Emission Microscope)の研究から生まれた装置で, 実は電子顕微鏡よりも古い歴史をもっています. しかし, 研究者の間に広く普及しはじめたのは意外に遅く, 1985 年に Telleps と Bauer により高分解能の LEEM/PEEM 装置が開発されてからです[7]. 現在では, いくつかのメーカーや研究所においてエネルギーアナライザーなどが付加された多機能な顕微鏡も開発されています. また, SPring-8 だけではなく, 世界のいろいろな放射光施設にも PEEM ステーションが設置されています. 高空間分解能で精度の良い測定を行うには高輝度の放射光を用いることが不可欠ですが, 第三世代の高輝度放射光施設が世界各地で稼働しはじめたことにより, PEEM を用いた研究も年々盛んになるとともに, 最近では 100nm 以下の空間分解能が実現されています. この空間分解能は通常の電子顕微鏡や走査型トンネル顕微鏡には及びませんが, 放射光との組み合わせにより, PEEM ならではの特徴ある研究が展開されています.

<放射光 PEEM>

放射光利用の最大の利点を 2 つ挙げるとすれば, (1)光のエネルギーを任意に選べる, (2)光の偏光を

切り替えることができる、ということになるでしょう。光のエネルギーを広い範囲に渡って変えることができるのは、現在のところ放射光のみです。また、偏光可変性についても、特に物質に対する透過率が極端に低いことにより偏光子が利用できない軟 X 線領域では、放射光しか解はありません。その放射光にしても、様々な技術革新により、円偏光の軟 X 線が利用可能となったのは、実は 1980 年代後半以降のことです。もちろん、利用できる光のエネルギー領域、偏光の種類については各ビームラインの挿入光源と分光器の設計に依存するため、目的に応じたビームラインの選定は必要となります。BL25SU では、軟 X 線領域 (220-2000 eV) の高輝度の左右円偏光を同一光軸上で切り替えながら使用できるビームラインであり、軟 X 線領域の MCD の実験に最適です。

<二次電子強度の分布像>

ひと口に光電子といっても、試料の仕事関数よりも大きなエネルギーをもつ光を試料表面に照射した時に発生する光電子は、実はいろいろな運動エネルギーを持っています。そこで横軸に運動エネルギーをとり、縦軸に光電子強度をプロットしてみると、試料の電子状態を反映する特徴的なピーク構造がいろいろと現れます。これを光電子ピークと呼びます (もちろん、真空準位から見てどこまでエネルギー的に深いところに存在する電子状態 (例えば 1s 電子状態など) を反映する光電子ピークが観測されるか否かは、照射する光のエネルギーに依存します)。このようなピークをつくる光電子は、光によって励起された光電子 (一次電子) がエネルギーを失うことなくそのまま真空中に飛び出したものですが、一次電子の全てがエネルギーを失わずに真空中に飛び出せるわけではなく、多くの一次電子は真空中に飛び出す過程で試料内部の他の電子や原子振動を励起してエネルギーを失います。そしてこのような励起 (一次電子の散乱) は何度も起こりえます (多重散乱)。物質に光を当てると、一次電子だけではなく、そのような多重散乱によってエネルギーを失った一次電子や、一次電子によって励起された電子、さらにその電子が励起した電子や多重散乱された電子も飛び出てきます。これらの多重散乱された電子達は光電子スペクトルの中でピーク構造を示さず、低運動エネルギー側で急激に増加するバックグラウンド・スペクトルを形成します。これを二次電子スペクトルと呼び、多重散乱されて出てくる光電子を二次電子と総称します。二次電子は試料の仕事関数以上の運動エネルギーを持たなければ真空中に飛び出すことができないため、二次電子スペクトルには、低運動エネルギー側のあるところで急激にゼロになるカットオフが現れます (このカットオフが現れる運動エネルギーの値から、逆に試料の仕事関数の値を知ることができます)。カットオフ近傍では二次電子は非常に強い強度を示すため、すべての光電子を取り込む設定の PEEM (特定の運動エネルギーの光電子だけを抽出するようなエネルギーアナライザーを用いない PEEM) では、顕微鏡画像は二次電子強度の分布像となります (すなわち、一次電子の PEEM 像は二次電子像にかき消されます)。この二次電子のカットオフ近傍の光電子強度は光の吸収係数に比例することが知られ、二次電子強度の分布像は X 線の吸収強度の分布像となります。

X 線の吸収スペクトルは、前述の通り、試料の電子状態の被占有準位から空準位への遷移が生じる光のエネルギーで大きな強度変化を示し (共鳴吸収)、このような強度変化が現れる光のエネルギーを吸収端 (absorption edge) と呼びます。吸収端が現れる光のエネルギーは、試料を構成する各元素に固有であるため、このことをうまく使えば光電子顕微鏡により元素分布像を得ることができます。

すなわち、元素分布が一様ではない試料について、特定の元素の吸収端に光のエネルギーを合わせて画像をとり、吸収端よりも低いエネルギーでとった画像で引き算をすると、その元素が存在する領域だけ強度の強い画像が得られることとなります。なお、光電子のエネルギーアナライザーが組み込まれている装置では、一次光電子の強度分布像をとることも可能です。ただし、大部分の光電子を捨てることになるので、必然的に画像は極端に暗くなってしまいます。従ってエネルギーアナライザーを用いた測定を行うには、照射する光の強度が十分に強いことが必須となります。

<SXMCD イメージング>

光吸収強度の二次元分布を与える PEEM 測定と円偏光軟 X 線を用いた SXMCD 測定を組み合わせると、多磁区状態にある磁性体の磁区構造を MCD シグナルの強度分布により視覚化することができます。すなわち、MCD シグナル強度がもっとも強い光のエネルギーに合わせて左右二つの偏光の場合についてそれぞれ撮像し、二つの画像の差分をとります。(3)式の関係に従って、図 18 のように入射光のヘリシティと各磁区内の磁気モーメントの向きに応じて磁区ごとに強度の違いが現れ、磁区構造を可視化することができます。図 12 で紹介したように、 L_3 吸収端と L_2 吸収端で得られる MCD の符号は反転しますので PEEM で得るイメージのコントラストも反転します。

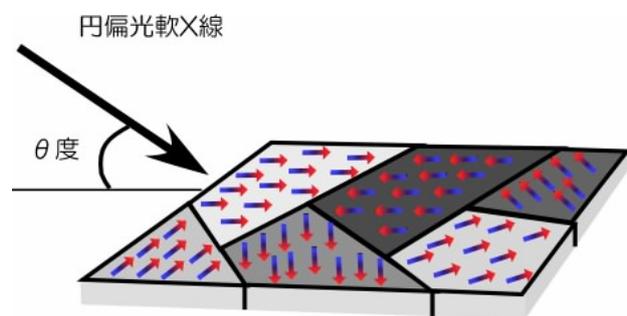


図 18 PEEM と MCD を組み合わせて磁区コントラストが得られる模式図

<PEEM による磁区観察の利点>

強磁性体の磁区構造の視覚化には、このような方法以外にも、ビッター法やローレンツ顕微鏡、カー顕微鏡、磁気力顕微鏡 (MFM) など、様々な方法が存在していますが[8]、元素分布と磁区構造の関わりを可視化できる点が PEEM の一番の特徴です。EEM 以外でこのような測定ができる手法としては、放射光マイクロ X 線を用いた X 線顕微分光 (X-ray microspectroscopy) があります。X 線顕微分光は、放射光のサイズを集光鏡などによって可能な限り絞り、光軸に対して試料位置を走査しながら光電子やオージェ電子、蛍光 X 線、透過 X 線を分光して強度の空間分布を計測する手法です。これにより元素分布像や MCD シグナルの強度分布像を得ることが可能です。この手法は、特に硬 X 線を用いて蛍光 X 線や透過 X 線を検出することで、強磁場下や高圧下にある試料、あるいは液体試料についても計測を行うことができるなど、光電子のみを用いる PEEM では実現できない実験を行えるという利点があります。一方、PEEM はビームの集光を必要としません。また、PEEM は投影法であるため試料位置の走査をせずにほぼリアルタイムでイメージを得ることができます。

<BL25SU の PEEM>

BL25SU では、ドイツの Elmitec 社が最近開発した世界最小サイズの PEEM (PEEMSPECTOR) を搭載したシステムを構築しています (図 19)。この PEEM では、計 4 つの静電レンズと一つの八重極静電ディフレクター/スティグメーターだけで構成される非常に簡素なつくりが採用されています (図 20)。そのため、きわめて操作が簡単であるという特徴があります。

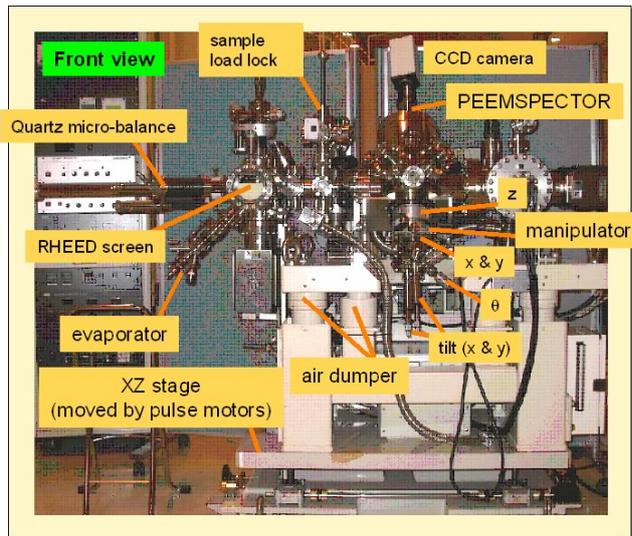


図 19 PEEMSPECTOR 9 装置外観

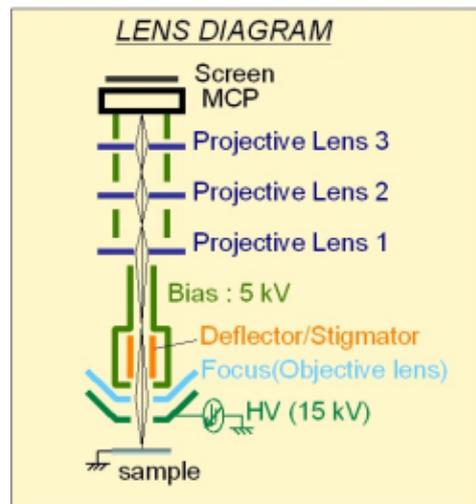


図 20 光電子顕微鏡(PEEMSPECTOR)と静電レンズ系のダイアグラム

実習の予定

当日の実習のスケジュールは以下の通りです。

9:00 BL25SU 作業テーブル付近に集合

9:00 – 実習内容の説明

9:10 – ハードディスクのトレンドと現状の課題についてレクチャー

9:30 – MCD、および、PEEM の説明 (終了後少し休憩)

10:00 – BL25SU に移動。試料準備。

10:30 – 試料トランスファー、ビームスポットの確認、MCD 測定の説明
(昼食)

13:30 – MCD スペクトル測定。ESMH 測定。ディスカッション。

15:30 – PEEM 測定。

17:00 頃 終了予定 (※実験にはトラブルが付きものです。多少予定が前後することもあります)

参考文献

- [1] 株式会社ネオマックス WEB ページ, <http://www.neomaxtr.co.jp/japan/usage.html>
- [2] 「情報機器と情報社会の素材集」, 文部科学省「情報機器と情報社会のしくみ」開発委員会, <http://www.kayoo.org/home/mext/joho-kiki/>
- [3] 東北大学工学部 高橋研究室 : <http://www.takahashi.ecei.tohoku.ac.jp/docs/research/sv.html>
- [4] C. T. Chen, N. V. Smith, and F. Sette, Phys. Rev. B **43**, 6785 (1991)
- [5] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan, Phys. Rev. Lett. **68**, 1943 (1992).
- [6] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli, and X. Wang, Phys. Rev. Lett. **70**, 694 (1993).
- [7] W. Telieps, and E. Bauer, Ultramicroscopy, **17**, (1985) 99.
- [8] A. Hubert, and R. Schaefer, *Magnetic Domains* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg 1998).

著作権

本原稿は 2005 年度 SPring-8 夏の学校の実習用テキストとして執筆されたもので、著作権は (財) 高輝度光科学研究センターにあります。使用目的を問わず、無断で複製、または、配布することを禁じます。