

SPring-8における磁性材料研究とダイナミクス計測 ～現状と今後の展望～

JASRI 利用研究促進部門
中村 哲也

磁気ダイナミクス
の測定

静的磁気測定@SPring-8

本講演では、軟X線MCDによる磁気評価の近況を紹介した上で、放射光パルスと同期したポンプ&プローブ測定概念とBL39XUにおける研究例を示す。また、1msec. ～1sec. の時間領域における時分割測定の例として、パルス強磁場XMCD測定を紹介する。



Outline

- 1) SPring-8における磁性材料研究の近況
- 2) 軟X線XMCDについて
- 3) BL39XUにおける磁気ダイナミクス実験の紹介
- 4) 1 msec ~ 10sec. の時間変化をXMCDで測る
- 5) 将来展望

配付資料では未発表データ等を割愛してあります。



X線～磁性電子間の直接的相互作用を利用（偏光を利用）

X線磁気円二色性実験



磁気分極

X線磁気回折実験



磁気構造

X線磁気コンプトン散乱実験



磁気分極（運動量空間）

X線～核スピン間の相互作用を利用（放射光によるメスバウアー）

核磁気共鳴実験



核スピン

構造・電子状態からの磁性へのアプローチ

X線回折実験



結晶構造

EXAFS実験



原子配列

(角度分解)光電子分光実験



バンド構造

非弾性散乱実験



フォノン分散



超磁歪効果の起源を発見・超磁歪と大きな圧電効果は類似原理に基づく・@BL15XU

物質: Terfenol-Dなど、物性: 超磁歪、手段: 光電子分光

磁場で駆動する形状記憶効果のメカニズムを初めて解明・大出力アクチュエーターの実用化に向けた新展開! @BL15XU

物質: $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Sn}_x$ 、物性: 巨大磁気形状記憶、手段: 光電子分光

垂直磁気異方性と化学結合の形の世界で初めて観測 - 高密度磁気記録開発の新たな指針 - @BL08W

物質: Co/Pd多層膜、物性: 垂直磁気異方性、手段: 磁気コンプトン

電子のスピンがらせんを描く起源を解明 - らせんの進行方向だけに存在する特殊な電子状態を初観測 - @BL17SU

物質: Fe薄膜、物性: スピンらせん、手段: 角度分解光電子分光

星から生まれる次世代磁気デバイス - ナノテクと惑星科学の融合した未来志向のものづくり - @BL25SU, BL17SU

物質: FeNi(隕石)、物性: 磁区構造、手段: 光電子顕微鏡

新しいスピン分極率評価法を開発 - スピントロニクス材料評価に新たな手法 - @BL08W

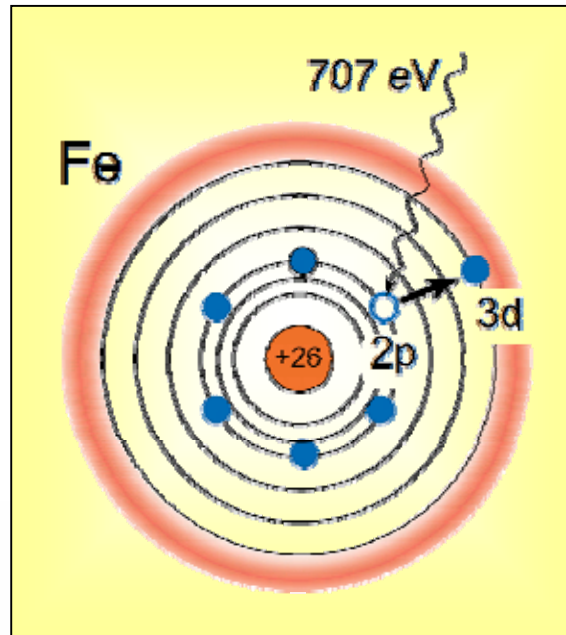
物質: $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{S}_2$ 、物性: ハーフメタル、手段: 磁気コンプトン

超強磁場X線分光実験の世界記録を抜本的に更新@BL39XU

物質: $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})$ 、物性: 価数揺動、手段: XMCD

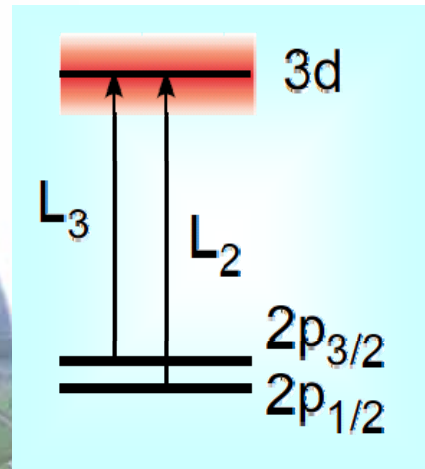


X線による共鳴内殻励起 (例: Fe L吸収端)



	L ₃ -edge	L ₂ -edge
Fe	707 eV	720 eV
Co	778 eV	793 eV
Ni	853 eV	870 eV

励起に必要なエネルギーは元素によって異なる。



遷移の終状態電子殻の情報を与える



元素選択性

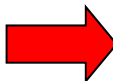
電子殻選択性


3d電子は遷移金属の磁性の担い手



Soft X-ray Magnetic Circular Dichroism


右回り円偏光  に対する、磁性体による吸収係数の差
左回り円偏光 

光子スピン(± 1) vs. 磁性電子スピン($\pm 1/2$)  物質の磁性

強度  磁気モーメント(m_z)に比例 ZはX線波数ベクトル方向

磁気光学総和側による、スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの分離評価

含有元素毎の磁化曲線 (M-H curve)

スペクトル形状  価電子帯のスピン構造

測定技術に対する要請  磁化測定と同等の外場環境



Magneto optical sum rule for XMCD

Magneto optical sum rule

Orbital sum rule B.T.Thole *et. al*, PRL 68, 1943 (1992).

Spin sum rule P.Carra *et. al*, PRL 70, 694 (1993).

Experimental confirmations

C.T.Chen *et. al*, PRL 75, 152 (1995).

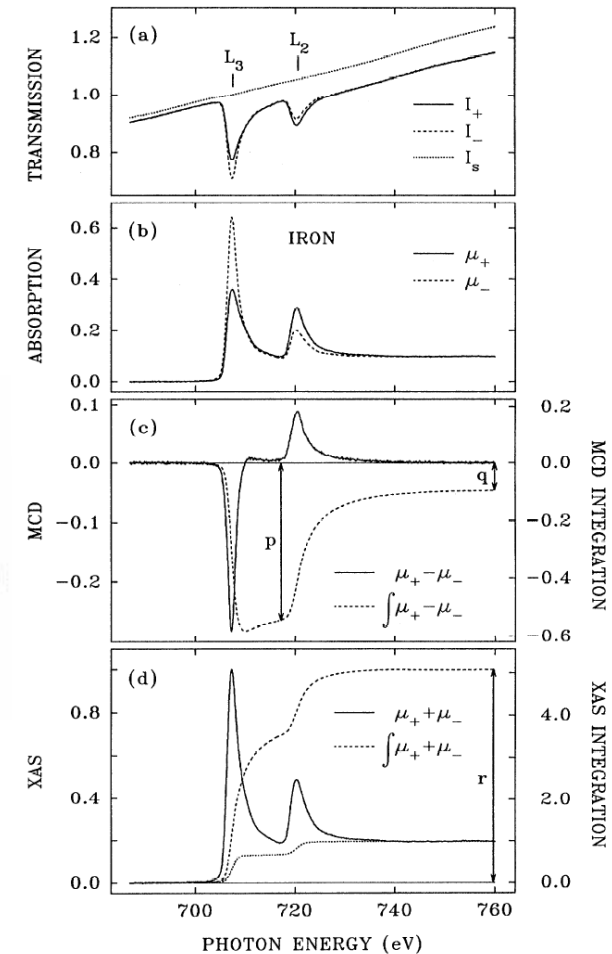
$$m_{orb} = -\frac{4 \int_{L_3+L_2} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{3 \int_{L_3+L_2} (\mu_+ + \mu_-) d\omega} (10 - n_{3d})$$

$$m_{spin} = -\frac{6 \int_{L_3} (\mu_+ - \mu_-) d\omega - 4 \int_{L_3+L_2} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{L_3+L_2} (\mu_+ + \mu_-) d\omega} (10 - n_{3d}) \left(1 + \frac{7 \langle T_z \rangle}{2 \langle S_z \rangle} \right)^{-1}$$

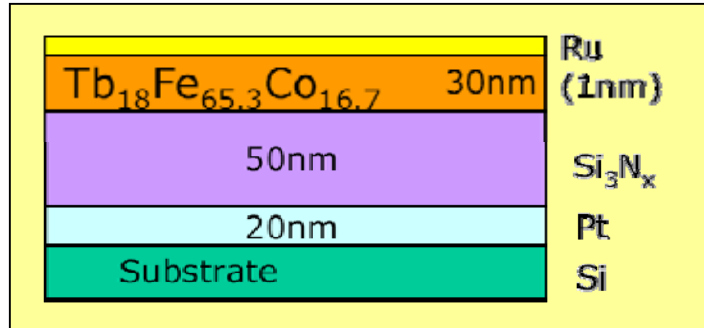


$$m_{orb} = -\frac{4q}{3r} (10 - n_{3d})$$

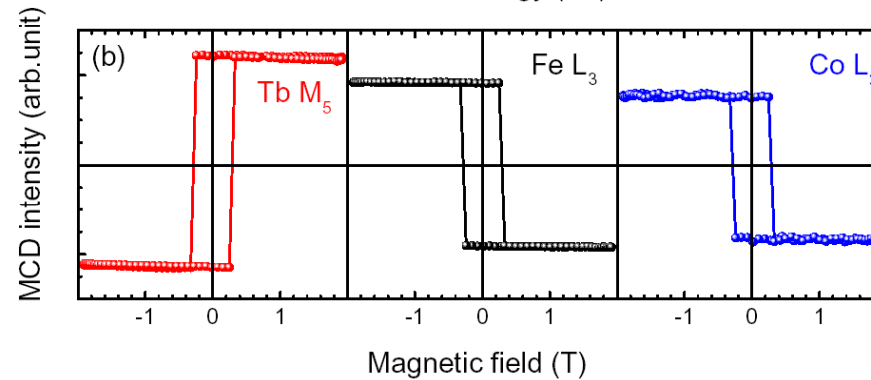
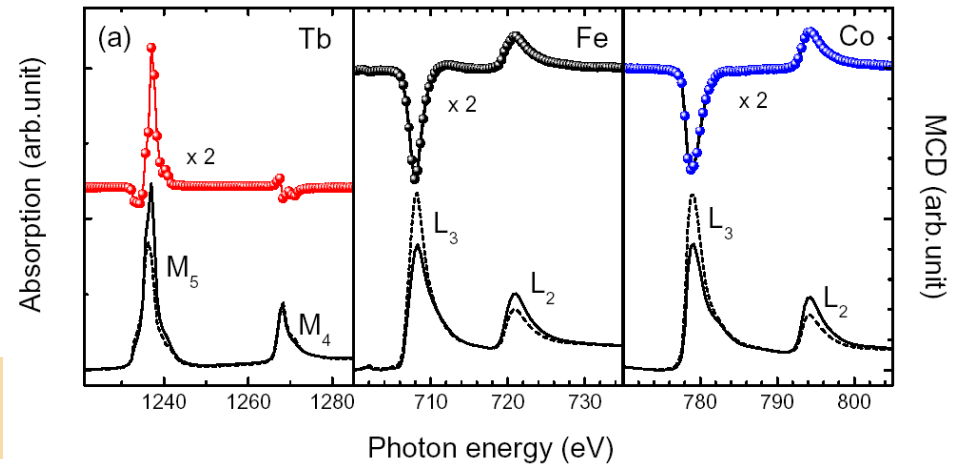
$$m_{spin} = -\frac{6p - 4q}{r} (10 - n_{3d})$$



Tb-Fe-Co 合金薄膜の元素選択磁気ヒステリシス



Tb – (Fe, Co) 間がフェリ磁性結合

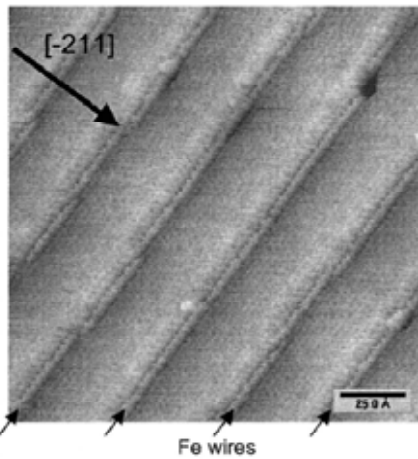


Ref. T.Nakamura et al., *J. Electron. Spectrosc. and Relat Phenom.* 144-147, 1035-1038 (2005).

Atomic wire on Au(788)

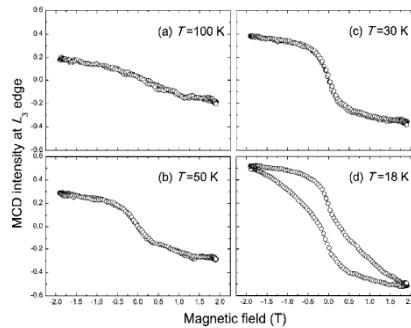
STM image

0.04 ML Fe on Au(455)



S. Shiraki et al., *PRL*. 92 (2004) 96102.

H.Fujisawa *et. al*, *PHYSICAL REVIEW B* 75, 245423 (2007)

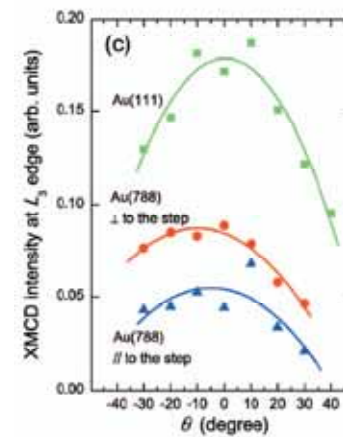
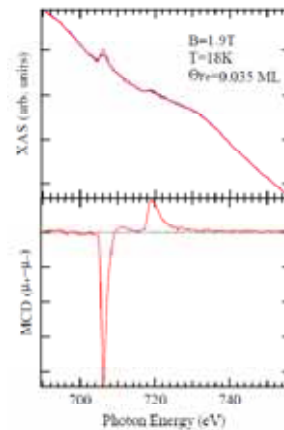


← Magnetic Hysteresis

Coverages vs. $R (=m_{orb}/m_{eff,spin})$ values determined by the integration of the MCD intensities at L_2 and L_3 edges

Coverage (ML)	R
0.25	0.094
0.70	0.070
1.25	0.062

Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 144-147 (2005) 519-523



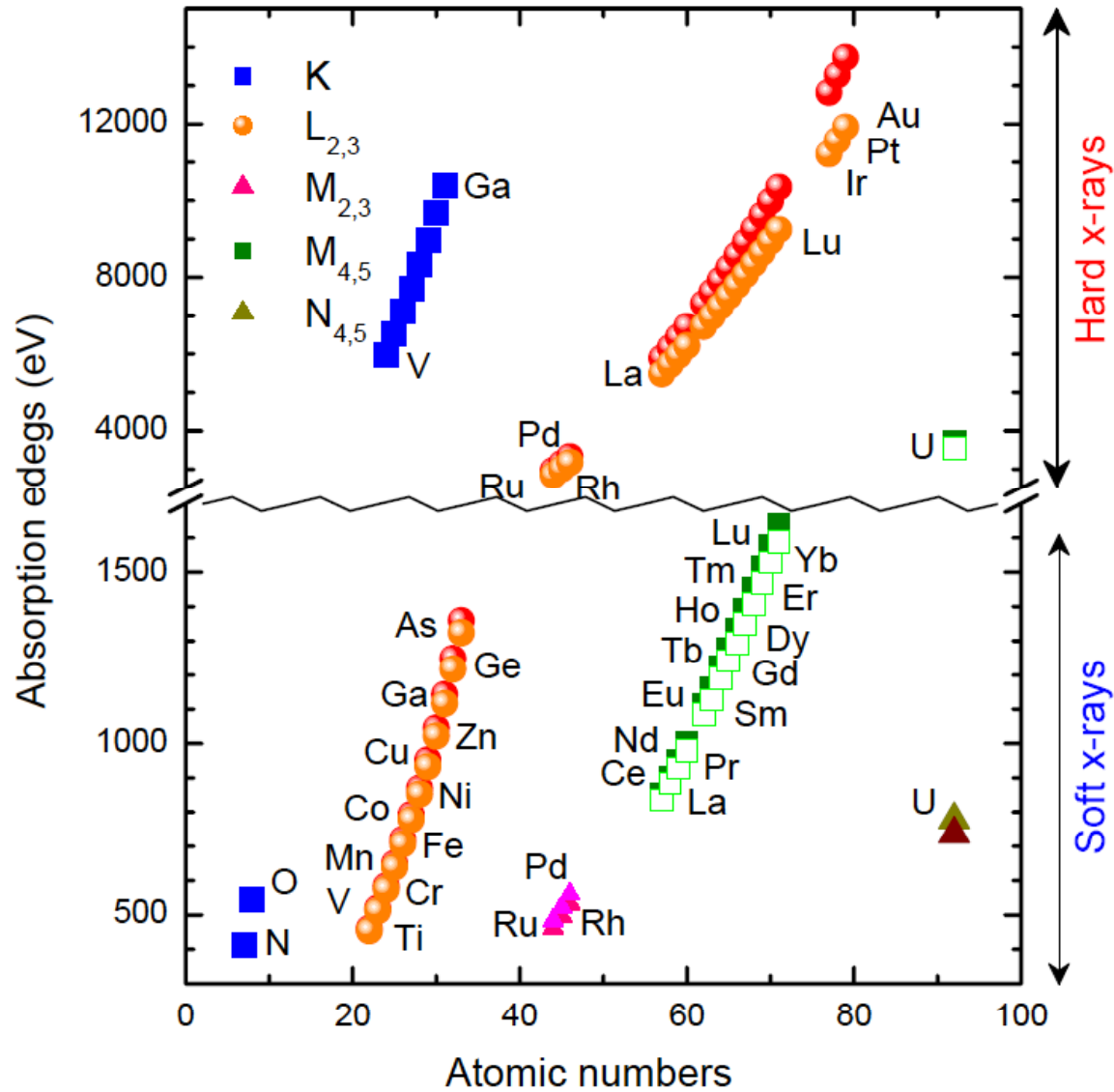
↑ Ratio of M_L and M_S

← Magnetic anisotropy

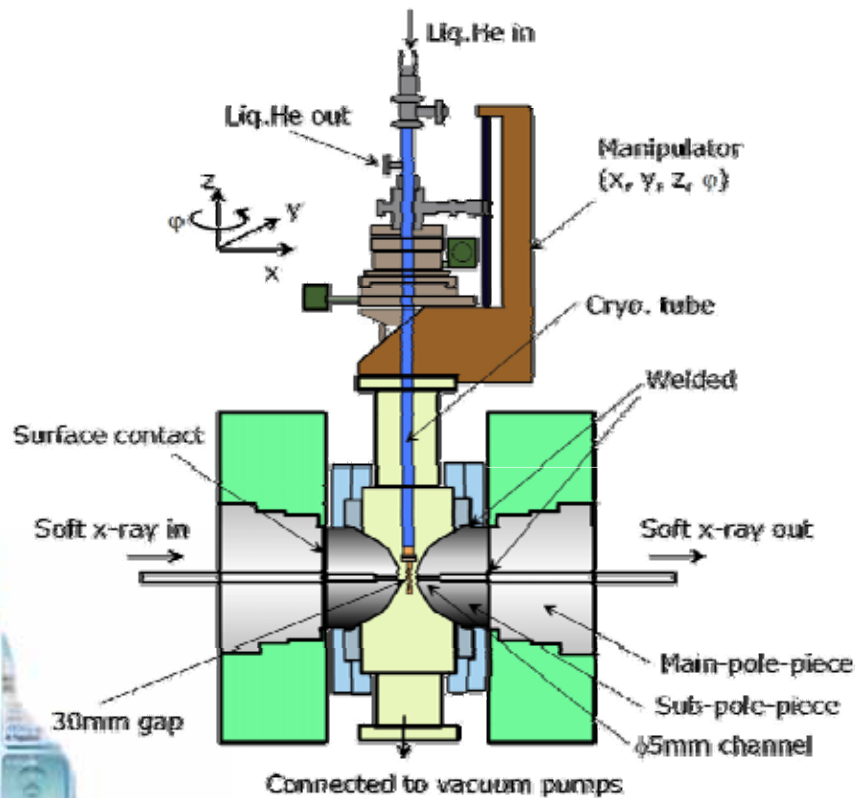
Au(111)から数度傾斜してカットした 基板Au(788)上に蒸着にてFeナノワイヤーを作製することができる。約0.07MLの薄膜に相当するほど希薄であり、通常の磁化測定を行っても基板の反磁性が支配的となり有意な測定は困難。また、表面のFeは極端に酸化されやすいので、UHV内のin-situ測定に限定される。XMCDで初めて磁化評価が可能になった。



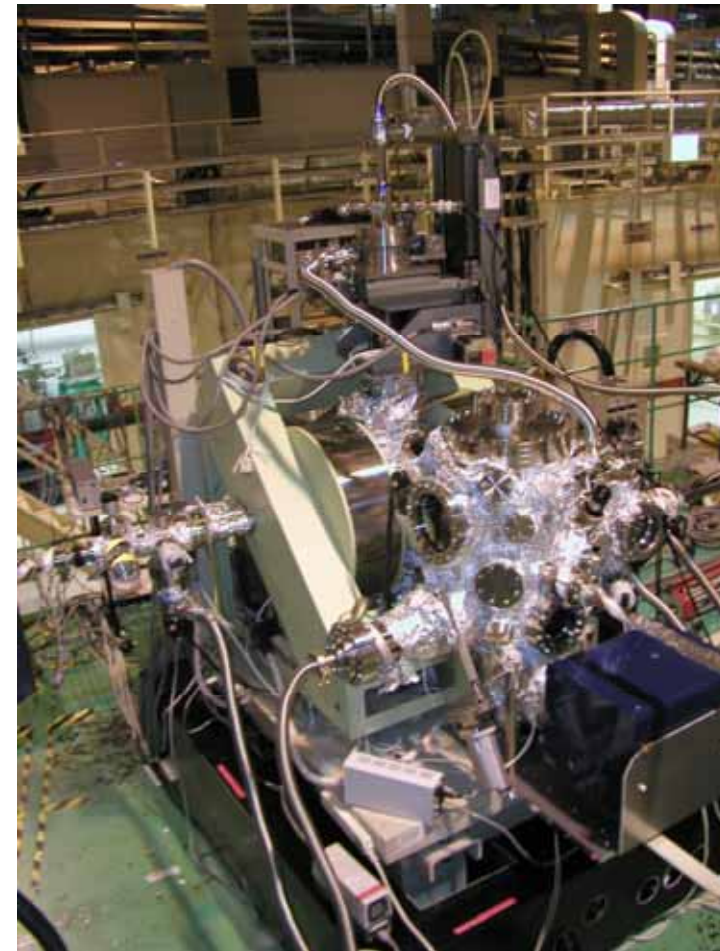
XMCD測定の対象元素



XMCD測定装置



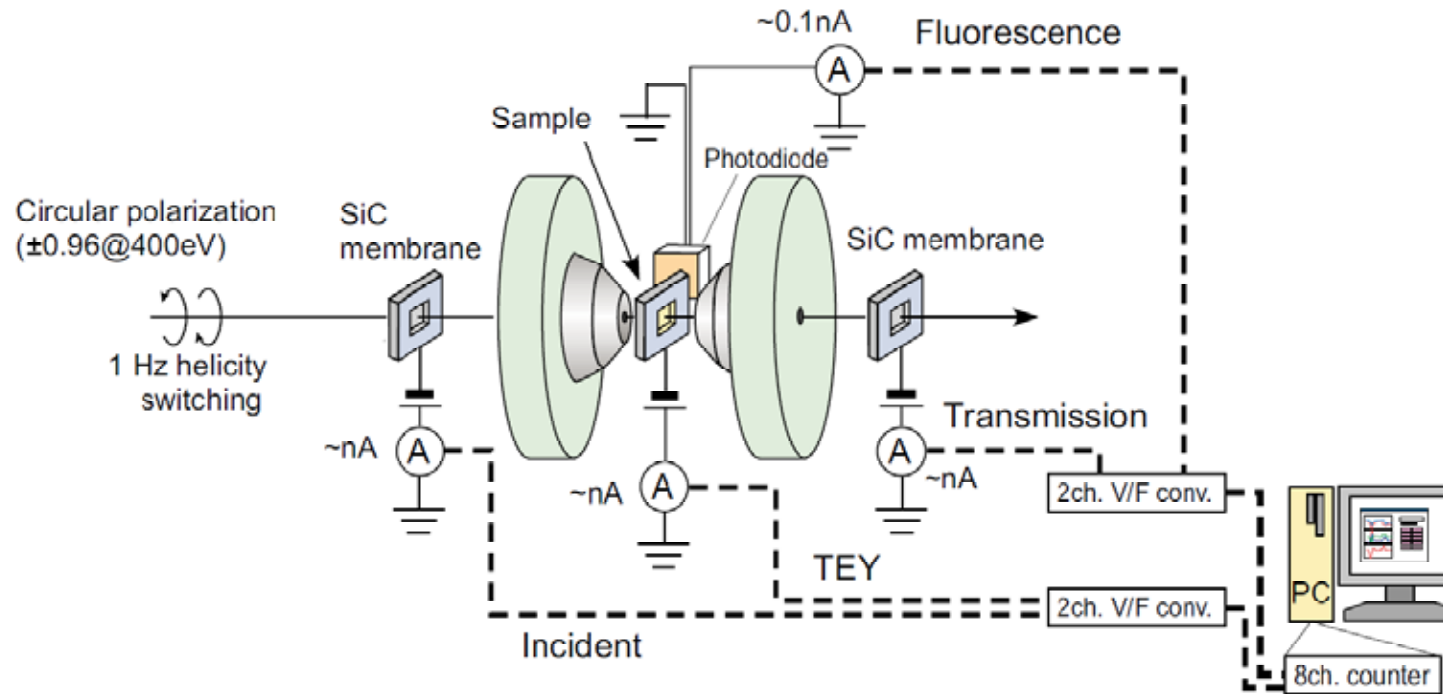
Magnetic field : -1.9 T - +1.9 T
 Beam size : $0.7\text{mm}^V \times 0.4\text{mm}^H$
 Cooling insert : 16K ~ 300 K
 Heating insert : 120K ~ 700 K



Measurement chamber ($5 \sim 20 \times 10^{-8}$ Pa)
 Preparation chamber ($3 \sim 10 \times 10^{-8}$ Pa)
 Ion sputter gun, LEED, Electron bombard, Q-mass
 Load lock chamber ($3 \sim 20 \times 10^{-6}$ Pa)



実験レイアウト



3ch.MCD同時計測システム。軟X線が透過可能な厚さ ($t \sim 100nm$)の導電性試料であれば全電子収量法(TEY)と透過法によって、それぞれ、薄膜表面(界面)の磁気情報と膜厚方向を平均化したバルク的な磁気情報が同時に得られる。この方法は、磁気ヘッド素子用の磁気多層膜のXMCD研究に活かされている。さらに、フォトダイオードによる全蛍光収量や正バイアス印加によって光電子引き込むタイプのTEYも選択的に組み合わせて利用している。

XMCDで得られる情報のまとめ



XASスペクトル



電子状態（局在性、価数変化など）

スペクトル単体で価数の絶対値を決めるなどの議論をすることは難しい。

XMCDスペクトル



磁気モーメントに関する情報

実験結果から定量的に求めることができる元素は限定されるが、外場や組成に対する相対的な変化を用いた議論は多くの場合において可能。

磁気光学総和則による m_s と m_l の定量評価

XMCD強度磁場依存性

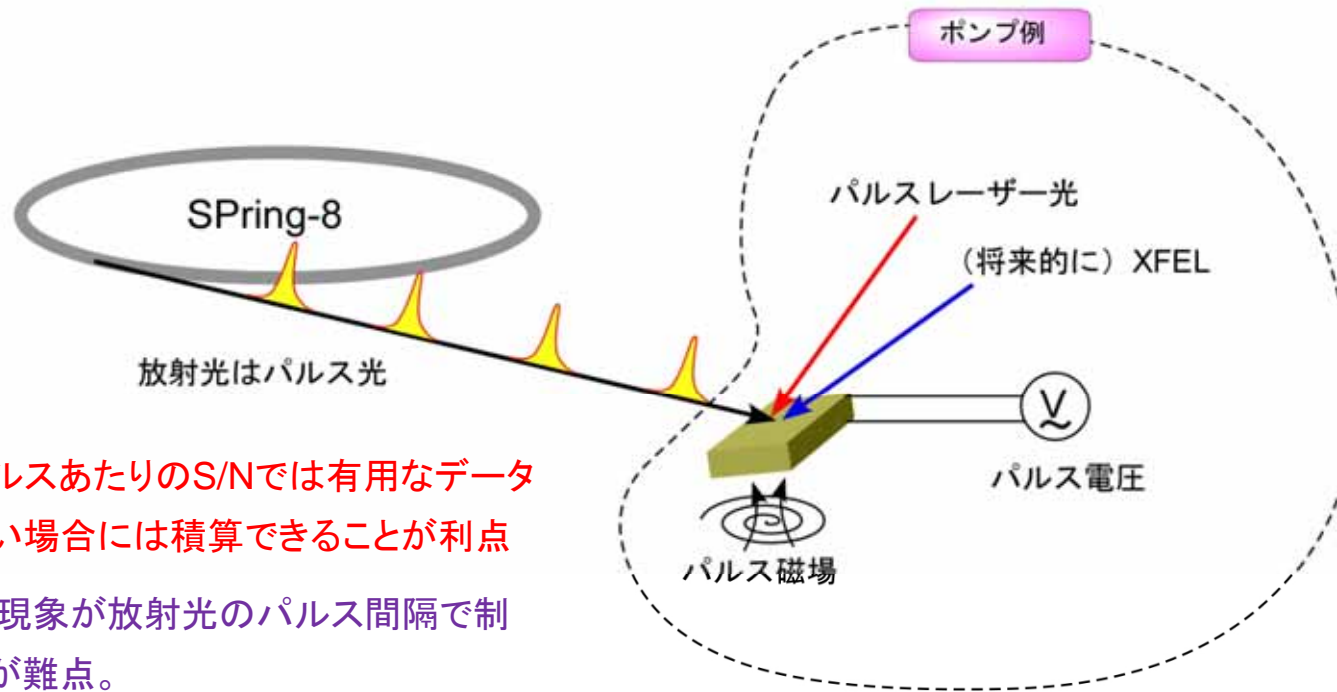


元素別磁気ヒステリシス曲線等

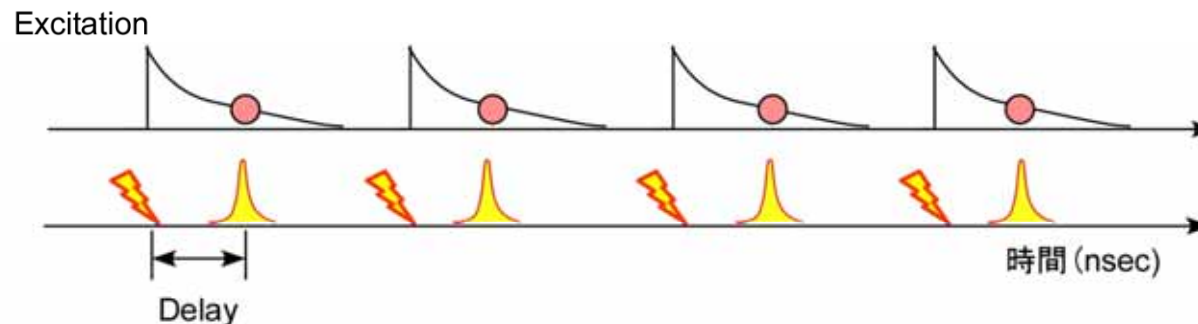
硬X線MCDの場合には元素選択性の確度に注意した解釈が必要。

放射光によるポンプ&プローブ時分割実験の概念

放射光による時分割実験では、放射光のパルス性を使ったポンプ&プローブ法を利用することが多い。
この方法では外場による励起状態が放射光パルスの間隔より速く緩和することが望ましい。



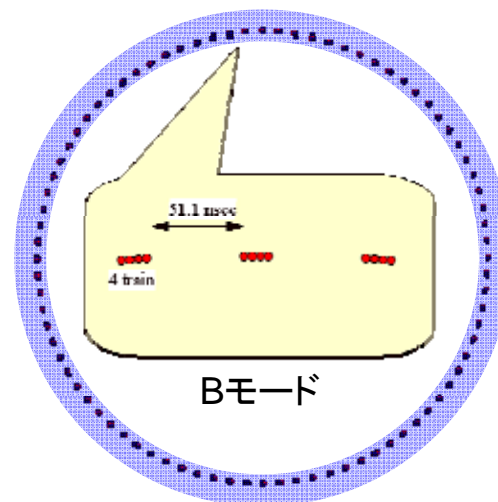
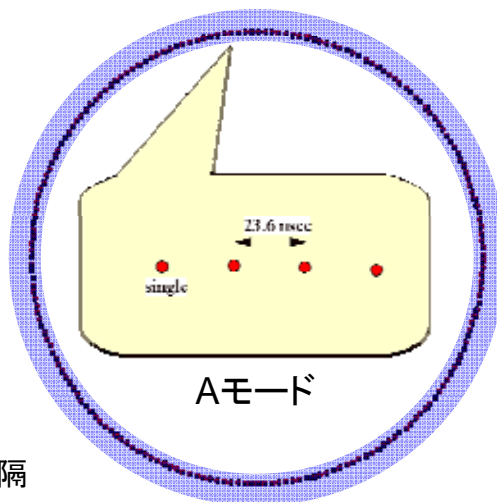
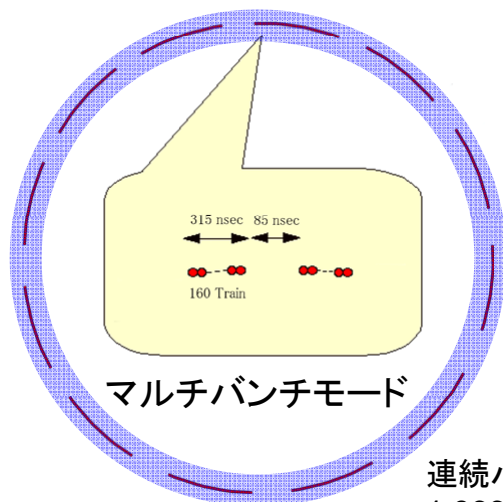
放射光1パルスあたりのS/Nでは有用なデータ
が得られない場合には積算できることが利点
観測可能な現象が放射光のパルス間隔で制
限されるのが難点。



SPring-8における放射光パルス

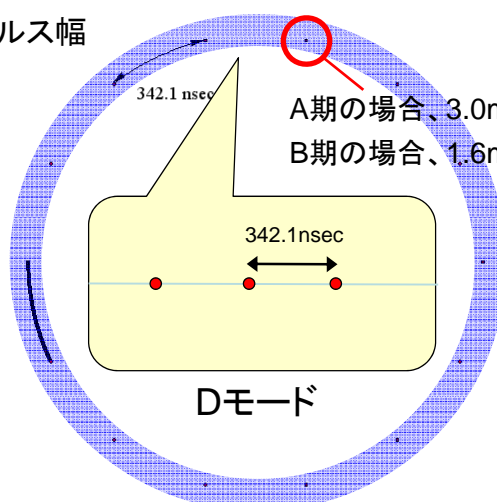
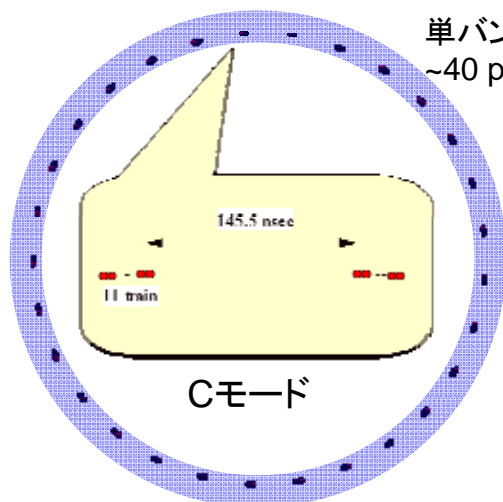


ダイナミクスを捉えるには「時分割測定」を行う。その際、重要となるのが放射光パルス間隔である。
SPring-8の場合、2010B期を例にとると以下の時間構造が予定されている。

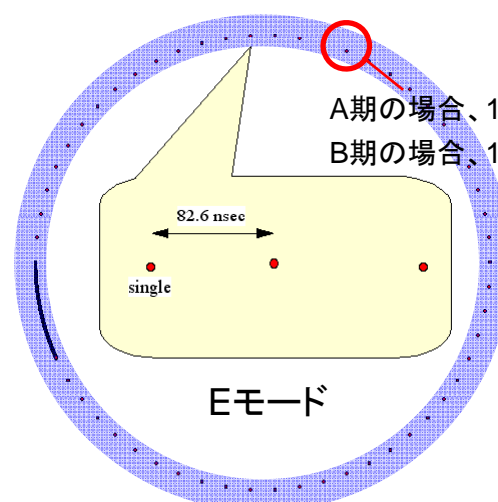


連続バンチ間隔
1.966 nsec

単バンチのパルス幅
~40 psec



A期の場合、3.0mA
B期の場合、1.6mA



A期の場合、1.4mA
B期の場合、1.0mA

A期の場合、684.3nsec

A期の場合、165.2nsec

サブピコ秒のXMCD実験例@Bessy II

Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel

C. STAMM¹, T. KACHEL¹, N. PONTIUS¹, R. MITZNER^{1,2}, T. QUAST¹, K. HOLLDACK¹, S. KHAN^{1*}, C. LUPULESCU^{1†}, E. F. AZIZ¹, M. WIETSTRUK¹, H. A. DÜRR^{1†} AND W. EBERHARDT¹

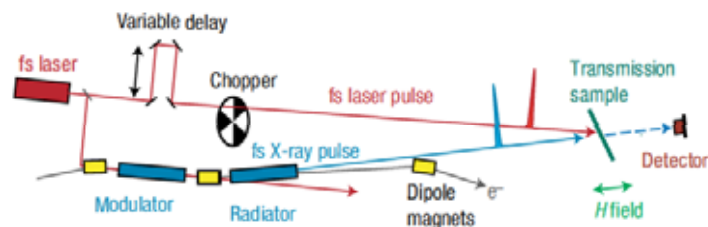


Figure 1 Schematic diagram of the pump-probe set-up. A femtosecond laser (wavelength 780 nm, repetition rate 1 kHz, pulse energy ~ 2 mJ) modulates the stored electron bunches in the modulator which subsequently generate femtosecond X-ray pulses in the radiator. The sample is excited by part of each laser pulse (15%) via a variable delay. Transmitted X-rays are detected by an avalanche photodiode behind the sample. The angle between the laser and X-ray beams is 1° . During time-resolved measurements a mechanical chopper in the pump beam is used to alternately measure the X-ray absorption of the laser-excited sample and the sample in thermal equilibrium with a repetition rate of 500 Hz.

C.Stamm *et. al*, Nature material **6**, 740 (2007).

レーザーを電子ビームに打ち込み、得られたサブピコ秒のパルス幅を有する放射光を用いた時分割実験の例。

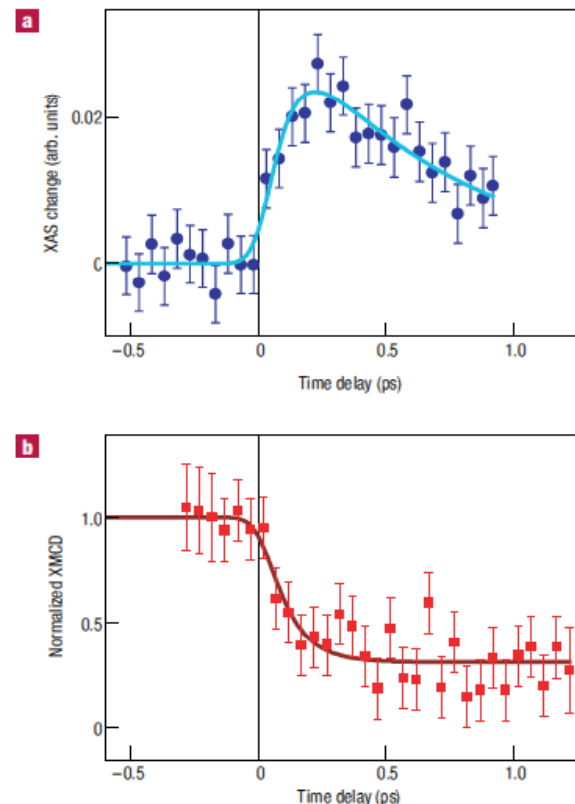


Figure 3 Femtosecond evolution of Ni electronic and magnetic structure. **a**, Time-resolved change of the XAS intensity with linearly polarized X-rays incident perpendicular to the sample surface versus pump-probe time delay (symbols) measured at a photon energy corresponding to the leading L_3 edge slope (arrow A in Fig. 2). The photon energy resolution was 1.5 eV. **b**, Time-resolved XMCD signal with circularly polarized X-rays incident at 60° relative to the sample surface versus pump-probe time delay (symbols) measured at the L_3 edge maximum (arrow B in Fig. 2). The photon energy resolution was 3 eV. Lines are fits of the three-temperature model to the data. The laser fluence was 8 mJ cm^{-2} . All XAS and XMCD data shown in this figure were taken from a 15-nm-thick Ni film and are normalized to the corresponding data taken without laser pulses. The error bars denote the standard deviation of the Poisson-distributed single-photon events.

Time-resolved XPEEM @ BL25SU

福本、木下、新井ら

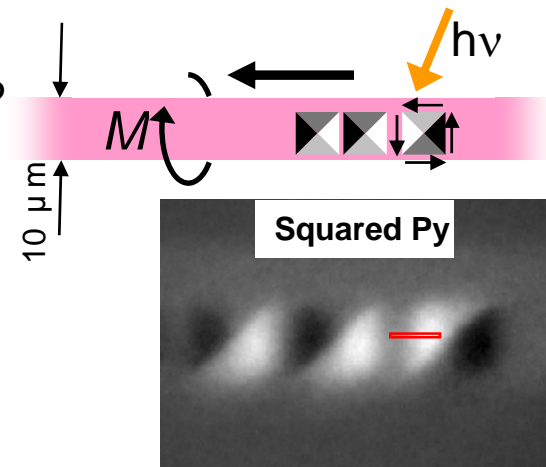
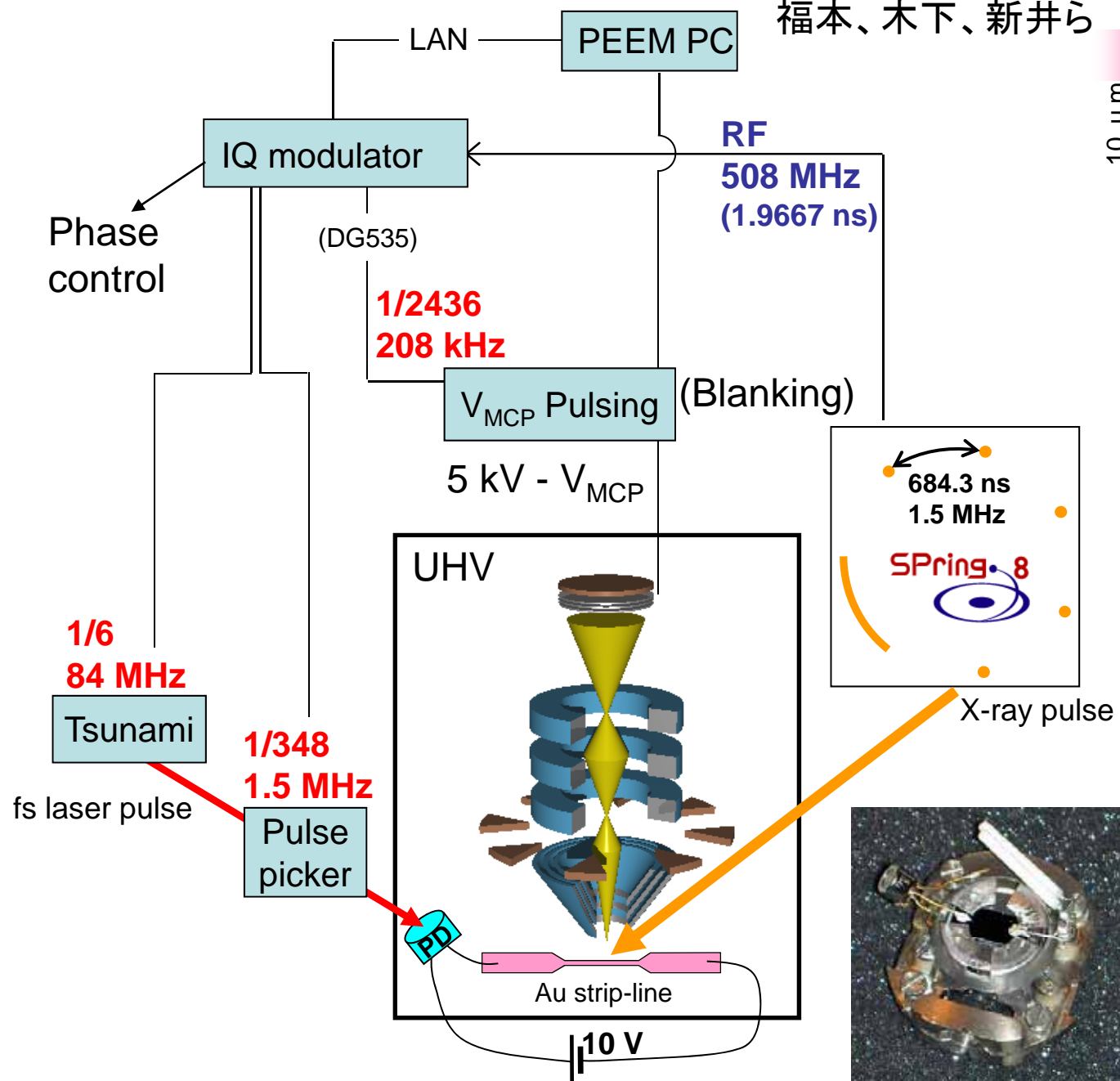
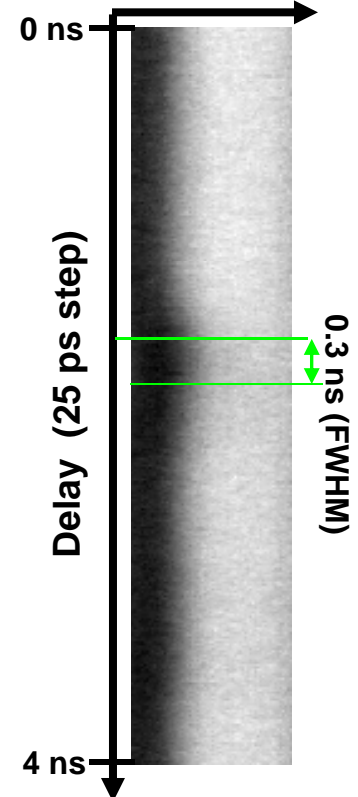


Image shift due to the Lorentz force



27 September – 2 October 2009
The Melbourne Convention and Exhibition Centre

Time-resolved hard X-ray magnetic microprobe at SPring-8

**Motohiro Suzuki¹, Naomi Kawamura¹, Hitoshi Osawa¹,
Masafumi Takagaki¹, Kanta Ono², Toshiaki Taniuchi³,
Shinji Isogami⁴, Masakiyo Tsunoda⁴**

¹ *JASRI/SPring-8*

² *High Energy Accelerator Research Organization (KEK)*

³ *The University of Tokyo*

⁴ *Tohoku University*

XMCDの時分割実験で得られる情報



XMCDの時分割実験で得られる情報

→ 元素別磁化 の
外場応答やその緩和現象の時間依存性

いわゆる「磁化」とは異なる物理量であるが、便宜的に「元素別磁化」と記した。

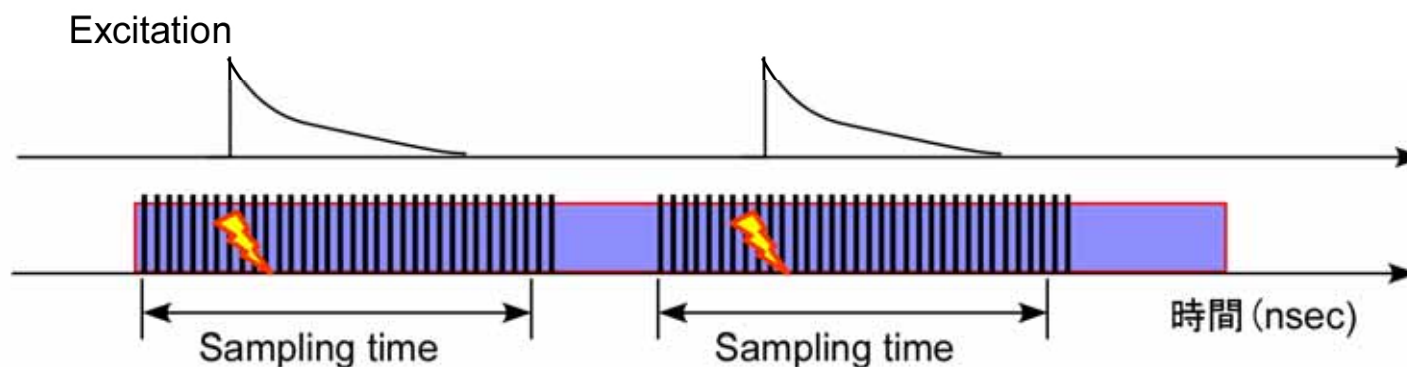
顕微測定の場合には、

→ 元素別磁区 の
外場応答やその緩和現象の時間依存性

マイクロビーム（走査型）、
光電子顕微鏡（結像型）、
ホログラフィー（干渉型）など

ポンプ&プローブに依らない時分割実験

放射光による時分割実験では、放射光のパルス性を使うが、パルス間隔より十分に長い時間(1msec.以上)の時間変化を観測したい場合は、放射光を連続光として扱った測定になる。

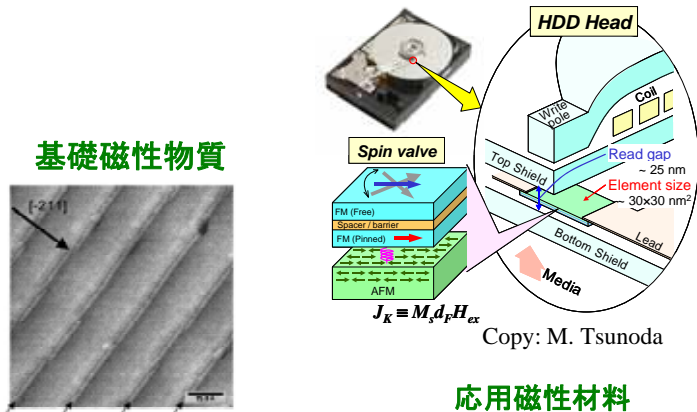


XAFSの場合は、1次元(または、2次元)検出器を用いて分散型でエネルギー領域をいきいきに計測する方法が用いられる。

パルス強磁場軟X線MCD測定技術の開発

中村哲也、鳴海康雄、林美咲、広野等子、児玉謙司、金道浩一、木下豊彦、野尻浩之

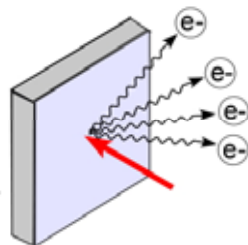
軟X線MCDによる元素選択磁化測定実験



S. Shiraki et al., *PRL*. 92 (2004) 96102.

しかし、これまで10 Tを超える磁場下での軟X線MCD技術は開発されていなかった

パルス強磁場軟X線MCDの開発



全電子収量法

(境界条件)

対象試料は薄膜、粉末、バルク(多数)

測定ツールとして発展させるための鍵

パルス強磁場下で1nA以下の電流を精度良く検出できるか？

フーリエ変換ホログラフィー(レンズレスイメージング)

コヒーレントX線の干渉を利用したナノイメージング法。ダイナミクス測定への拡張に期待。

[Applied Physics Express 3 \(2010\) 085201](#)

Large Area Imaging by Fourier Transform Holography Using Soft and Hard X-rays

Naoki Awaji*, Kenji Nomura, Shuuichi Doi, Shinji Isogami¹, Masakiyo Tsunoda¹, Kenji Kodama², Motohiro Suzuki², and Tetsuya Nakamura²

Device Integration Technologies Laboratory, Fujitsu Ltd. and Fujitsu Laboratories Ltd., Atsugi, Kanagawa 243-0197, Japan

¹*Department of Electronic Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan*

²*JASRI/SPring-8, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan*

Received June 8, 2010; accepted June 24, 2010; published online July 16, 2010

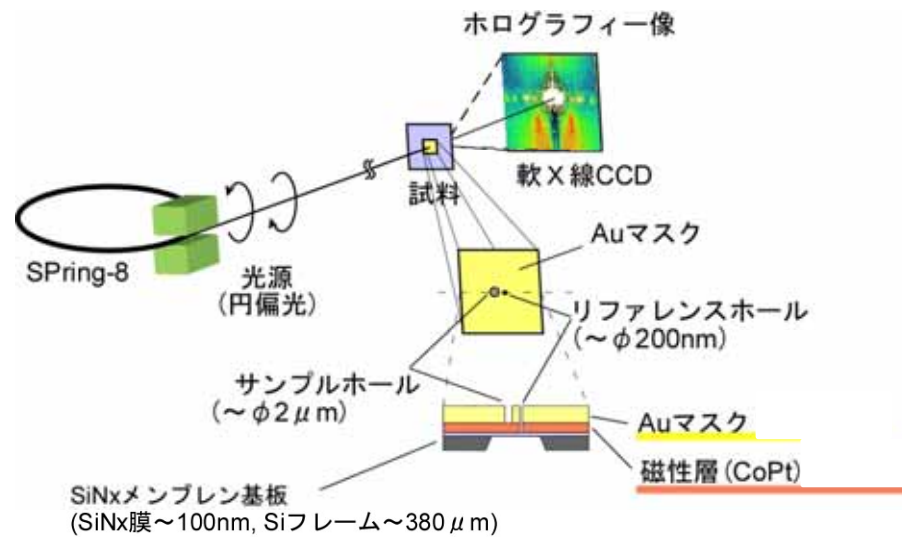


図1 軟X線磁気ホログラフィー実験の概念。

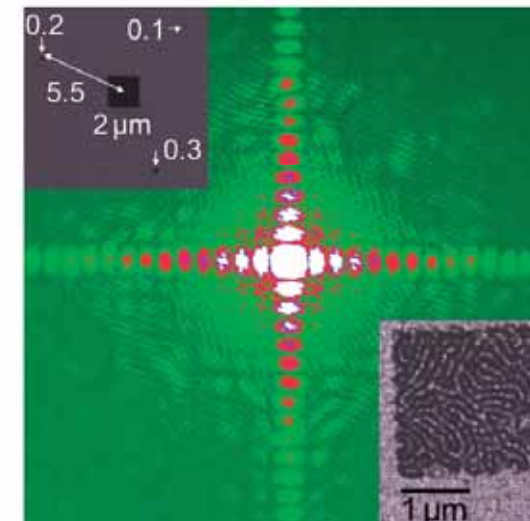


Fig. 1. X-ray hologram from the Co/Pt multilayer sample. The upper inset figure is a SEM image of the holography-mask. The lower inset figure is a shaded plot (bird's eye view) of recovered image intensity of the magnetic domain.

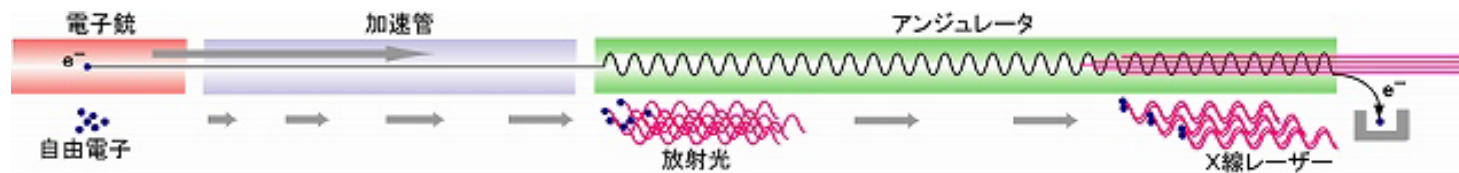
X線自由電子レーザー(XFEL)



XFELとSPring-8をポンプ光やプローブ光に用いた新しいダイナミクス実験が期待される



SPring-8キャンパスに建設中のXFEL施設(2010年度完成予定)



- ・X線領域($\lambda = 0.1 \text{ nm}$)のレーザー光源
- ・非常に高い瞬間輝度(SPring-8の10億倍)
- ・超短パルス($\sim 10 \text{ fs}$)
- ・コヒーレンス特性

XFEL利用推進研究課題

『物質のフェムト秒物理・化学現象解析のためのX線散乱計測技術』 代表: 松原英一郎(京大)

磁気スペックル計測グループ: 角田(東北大)、中村(JASRI)、鈴木(JASRI)、淡路(富士通)