

アバランシェ・フォトダイオード検出器を用いた
共鳴磁気散乱測定法の開発と薄膜磁性研究への応用

早崎 有一

2006年3月

奈良先端科学技術大学院大学

物質創成科学研究科

目次	
第1章 緒論	1
1.1 はじめに	1
1.2 アバランシェ・フォトダイオードをX線検出器として用いた既往の研究	2
1.3 目的	2
第2章 実験装置と実験方法	5
2.1 測定システムの構成	5
2.2 APD素子の特性	8
2.3 X線ダイヤモンド位相子	10
2.4 同期測定	11
第3章 X線鏡面反射、共鳴X線磁気散乱及びX線磁気円二色性の理論	13
3.1 X線鏡面反射	13
3.1.1 表面からのX線鏡面反射	13
3.1.2 多層膜構造からのX線鏡面反射率	19
3.2 共鳴を考慮したX線散乱振幅	20
3.3 散乱振幅の偏光依存性と円偏光	23
3.3 X線磁気円二色性	27
第4章 磁気散乱実験 方法	28
4.1 試料	28
4.2 X線磁気散乱実験配置	29
4.3 X線共鳴磁気散乱の測定方法	29
第5章 磁気散乱実験 結果	32
5.1 測定データ	32
5.2 差/和データ $[I^+ - I^-] / [I^+ + I^-]_{B.P}$	38
第6章 磁気散乱実験 解析	46
6.1 放射光の時間構造	46
6.2 数え落とし補正	48
6.3 磁気散乱の位相子振動周波数依存性	53
6.4 CuK端における磁気散乱実験 結果	54
6.5 APD検出器の有効性	55
第7章 APD検出器を用いた磁気散乱測定法の薄膜磁性研究への応用	57
7.1 Fe/Au多層膜	57
7.1.1 試料	57
7.1.2 共鳴X線磁気散乱実験	58
7.1.3 結果と考察	59
7.2 Co/Cu/Gd/Cu多層膜	61
7.2.1 試料	61
7.2.2 磁化測定	62

7.2.3 X線共鳴磁気散乱実験	63
7.2.4 結果と考察	67
第8章 総括	73
参考文献	74
謝辞	75

第 1 章 緒論

1.1 はじめに

微細加工・薄膜作成技術等の発展によりバルクでは見られない性質をもつ人工格子材料が作成されるようになった。中でも磁性人工格子では巨大磁気抵抗効果やトンネル磁気抵抗効果などを用いた技術が既に実用化されている[1]。それら人工格子特性の起源は数Åから数十Åの非磁性層を通した磁性層間の相互作用や磁化配置に因るものと考えられる。このような磁性人工格子の磁性を調べる方法としては磁気力顕微鏡 (MFM : magnetic force microscope)、円偏光を用いた光電子顕微鏡 (PEEM : photoelectron emission microscope)、磁気光学カー効果 (MOKE : magneto-optical Kerr effect)、中性子回折、X 線共鳴磁気散乱等が挙げられる。しかしこれらの実験方法の多くは表面磁性あるいは人工格子全体の平均的磁気構造に関する情報を得るものであり、磁性人工格子のような構造に対してその磁気モーメントの空間分布に関する情報を得ることができるのは中性子回折および X 線共鳴磁気散乱のみである[2]。

一般に X 線磁気散乱は電荷散乱に比べてその強度が弱く磁気情報を取り出すことは困難であったが、高輝度大強度の偏光 X 線が得られる放射光の利用によって可能となった。また X 線磁気共鳴散乱は中性子散乱と異なり共鳴原子のスピン偏極に依存する散乱であるため元素選択性という利点があるが、これも X 線エネルギーを自由に選択できる放射光が不可欠である。X 線共鳴磁気散乱は 1985 年 Namikawa らによって Ni K 吸収端エネルギーの X 線を Ni 単結晶で散乱させた実験によってその存在が確認された[3]。1986 年には Veitner らによって GdL 吸収端の共鳴を利用して Gd-Y 人工格子中の Gd 層の磁気構造が論じられている[4]。これらは直線偏光を用いた磁気散乱実験であったが、1994 年には Kao らによって直線偏光より強い磁気散乱シグナルが期待できる円偏光を用いた磁気散乱実験も行われ、より小さな磁気モーメントを持つ系への適用が始まった[5]。しかしこの間、磁気散乱実験に用いられた検出器は SSD 検出器や NaI シンチレーション検出器などでありその計数率は入射 X 線と比して低く抑える必要があり元来放射光の持つ大強度を活かしていない。このため本研究では磁気散乱実験の高効率化と高精度化を測るためアバランシェ・フォトダイオードを検出器として採用した。Co/Cu 磁性多層膜の X 線共鳴磁気散乱測定を通して磁気散乱実験に対するアバランシェ・フォトダイオード検出器の有効性を議論する。また薄膜磁性研究への応用として Co/Cu/Gd/Cu 多層膜の X 線共鳴磁気散乱を測定し、Co 層、Gd 層の磁性について議論する。

1.2 アバランシェ・フォトダイオードを X 線検出器として用いた既往の研究

アバランシェ・フォトダイオード (APD : Avalanche photodiode) を X 線検出器として用いる最大の利点はナノ秒オーダーの速い応答にある。この速い応答パルスにより高い時間分解能が得られるため核共鳴散乱線のタイミング検出に利用されてきた[6]。またこの高速応答性は高計数率測定という点でも大きなアドバンテージとなるため、APD のノイズの低さとあわせて、測定可能な計数率の範囲＝ダイナミックレンジを広げる。この APD の持つ広いダイナミックレンジを利用した精密電子密度分布測定も行われている。

高計数率 X 線を直接検出する場合の APD の特性が Kishimoto[7]、Baron[8]により調べられている。Kishimoto は空乏層厚 120 μm の APD 素子 (浜松ホトニクス SPL2625) を検出器として使い、周波数帯域 1.5 GHz のプリアンプ、周波数 300 MHz のスケーラからなるシステムにより測定を行った。アンプの出力パルス幅は 3.2 ns、ディスクリミネータの出力パルス幅は 3.9 ns である。1 つの APD 素子の検出効率は 16.5 keV の X 線に対して 18% である。ノイズレベルは 0.01 cps 以下で 1×10^8 cps まで計数直線性がある。一方、Baron は検出器に空乏層厚 100 μm の APD 素子 (EG&G Optoelectronics) を使い、周波数帯域 ≥ 1 GHz のプリアンプ、および 120 MHz のカウンターに相当するプリスケラ/カウンターのパッケージからなるシステムで実験を行った。出力パルス幅は 4~5 ns である。1 素子の検出効率は 10 keV 以下の X 線に対し $>50\%$ である。ノイズレベルは約 0.01 cps で 1×10^7 cps までの計数直線性がある。

S. Marchesini らは APD を用いた高計数率測定により X 線蛍光ホログラフィ (XFH : X - ray fluorescence holography) を測定している[9]。ホログラフィ信号はバックグラウンドである等方的な蛍光放射と比較して 10^3 程度であり、高計数率測定が要求される。またペルチェ素子により冷却した APD 検出器を用いた XFH 測定[10]も行われているが、共鳴 X 線磁気散乱に用いた例はこれまで報告されていない。

1.3 目的

硬 X 線領域における共鳴 X 線磁気散乱実験は円偏光を用いた磁場反転法から始まった。1997 年、Hashizume らは GdCo/Ag 多層膜について GdL₃ 吸収端における磁気散乱実験を行っている[11]。この実験では人工格子の周期に由来するブラッグピーク周りで測定を行い電荷散乱強度に対して 0.1% オーダーのシグナルを検出している。翌 1998 年にはこれと同様の実験手法を用い Lee らにより Fe/Gd 多層膜について GdL 吸収端における磁気散乱実験が行われている[12]。これと同じ年、Hashizume らによってダイヤモンド位相子を用いたヘリシティ反転法による磁気散乱実験が Fe/Gd 多層膜について GdL₃ 吸収端で行われた[13]。1999 年には同グループ (Ishimatsu ら) により

同手法を用い、Fe/Gd 多層膜の磁気散乱が試料温度を変えて測定された[2]。この実験では通常の電荷散乱測定で使用する計数率 15000~30000cps 程度の測定において磁気散乱以外の人為的なピークが現れたため、計数率を 5000~6000cps 程度にまで落として測定された。これは 15000cps 程度の計数率においてシンチレーション検出器が線形性を失っていることが原因である。ただしここで言う線形性とは通常の電荷散乱ではなく、電荷散乱に比して高々1%程度しかない磁気散乱シグナルを検出するために必要な精度の線形性である。

硬 X 線を使用する利点として

- (1) 軟 X 線よりも侵入長が大きく、多層膜構造の周期性に起因するブラッグ反射を観測しやすい
- (2) 短い波長のために狭い散乱角 θ でより広い逆空間の測定が可能
- (3) 真空中で行われる軟 X 線実験と異なり空気中での実験が可能のため実験設備が簡便

などが挙げられる。一方、硬 X 線領域における磁気散乱は K 吸収端（遷移金属）あるいは $L_{2,3}$ 吸収端（希土類金属）において測定する。その場合に検出される共鳴磁気散乱は磁化を直接担う 3d、4f 電子のスピンの偏極ではなくそれらによって誘起されたスピンの偏極その磁気散乱強度は極めて小さなものとなる。

共鳴 X 線磁気散乱強度は 4f 希土類金属である Gd の L 端で電荷散乱強度の 10^2 程度、3d 強磁性金属 Co の K 端ではさらに小さく 10^3 程度である。そのため磁気散乱シグナルの S/N を考えると、磁気散乱測定には電荷散乱のピークにおいて 10^5 から 10^6 カウント以上の蓄積が必要となる。第 3 世代シンクロトロン放射光源では金属多層膜の電荷散乱は $\sim 10^8$ cps 程度であるが、高計数率 NaI シンチレーション検出器を用いた場合、磁気散乱測定時の許容計数率の上限が $\sim 10^4$ cps であるため、X 線の強度を大幅に落として測定しなければならならず十分な S/N を得るためには非常な長時間を要する。

この高計数率 NaI シンチレーション検出器は通常の電荷散乱実験で用いる場合、その許容計数率は 5×10^5 cps 程度である。それが磁気散乱測定時に一桁小さくなるのは、これまでの経験から入射する円偏光 X 線のヘリシティに関する強度変化に起因していると考えられる。この強度変化は円偏光を作り出すためにラウエ配置で使用しているダイヤモンド位相子が完全性の高い結晶であるために現れる動力学的な効果が原因である。この効果はボルマン効果（異常透過）と呼ばれる。これにより試料に入射する左右円偏光の強度に数%の差が生じ、これが磁気散乱シグナルに対する大きなバックグラウンドとなるためシンチレーション検出器を高い計数率で使用することが

できない。

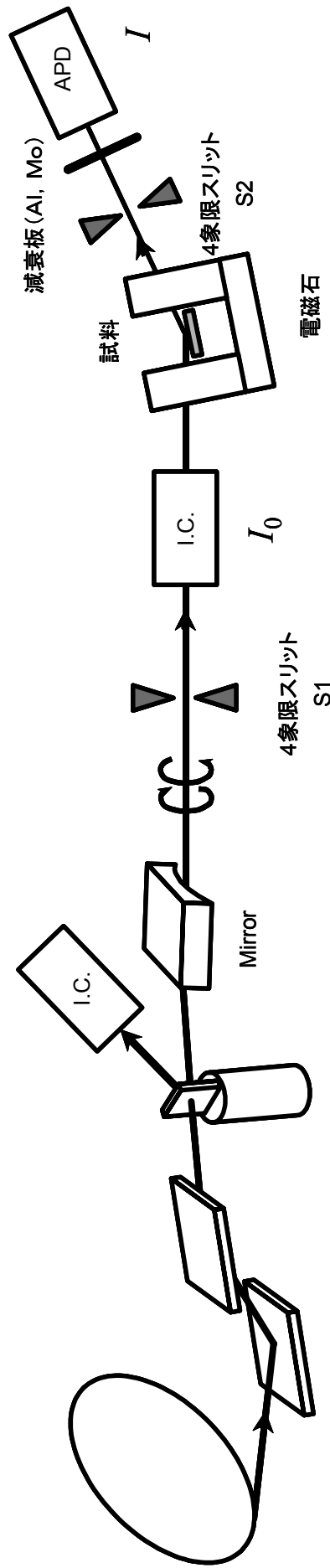
そこで、第3世代シンクロトロン放射光の強いX線を活かせる、より高い計数率で共鳴X線磁気散乱測定が可能なAPD検出器を用いた高速計数システムを開発することにより3d強磁性金属の磁気散乱が検出できる測定法の開発が求められている。

本研究では主にCo/Cu磁性多層膜のCo吸収端の磁気散乱を通じてその有効性を議論する。また3d強磁性金属であるCoの共鳴X線磁気散乱強度は電荷散乱の0.1%程度と弱い、Co層に挟まれたCu層ではその強度はさらに弱く電荷散乱の0.01%のオーダーである。このCu共鳴X線磁気散乱測定の可能性を探るために、より高い計数率におけるCu端の測定も試みた。さらに、このAPD検出器を用いた磁気散乱測定法の応用このCu層と同程度に弱い磁気散乱強度を持つAu/Fe多層膜のFe端の磁気散乱結果とCo/Cu/Gd/Cu多層膜における磁気散乱結果も合わせて示す。

第 2 章 実験装置と実験方法

2.1 測定システムの構成

放射光施設における磁気散乱実験の光学測定系を図 2.1 に示す。この図は SPring-8 BL39XU の測定系であるが、Advanced Photon Source BL 4-ID-D でも同様である。またこの光学系の下流部分にあたる APD 検出器を用いた高計数率・高速磁気散乱測定システムの構成を図 2.2 に示す。



Si(111)
2結晶モノクロメータ

ダイヤモンド位相子

図2.1 SPring - 8 BL39XU 磁気散乱測定配置

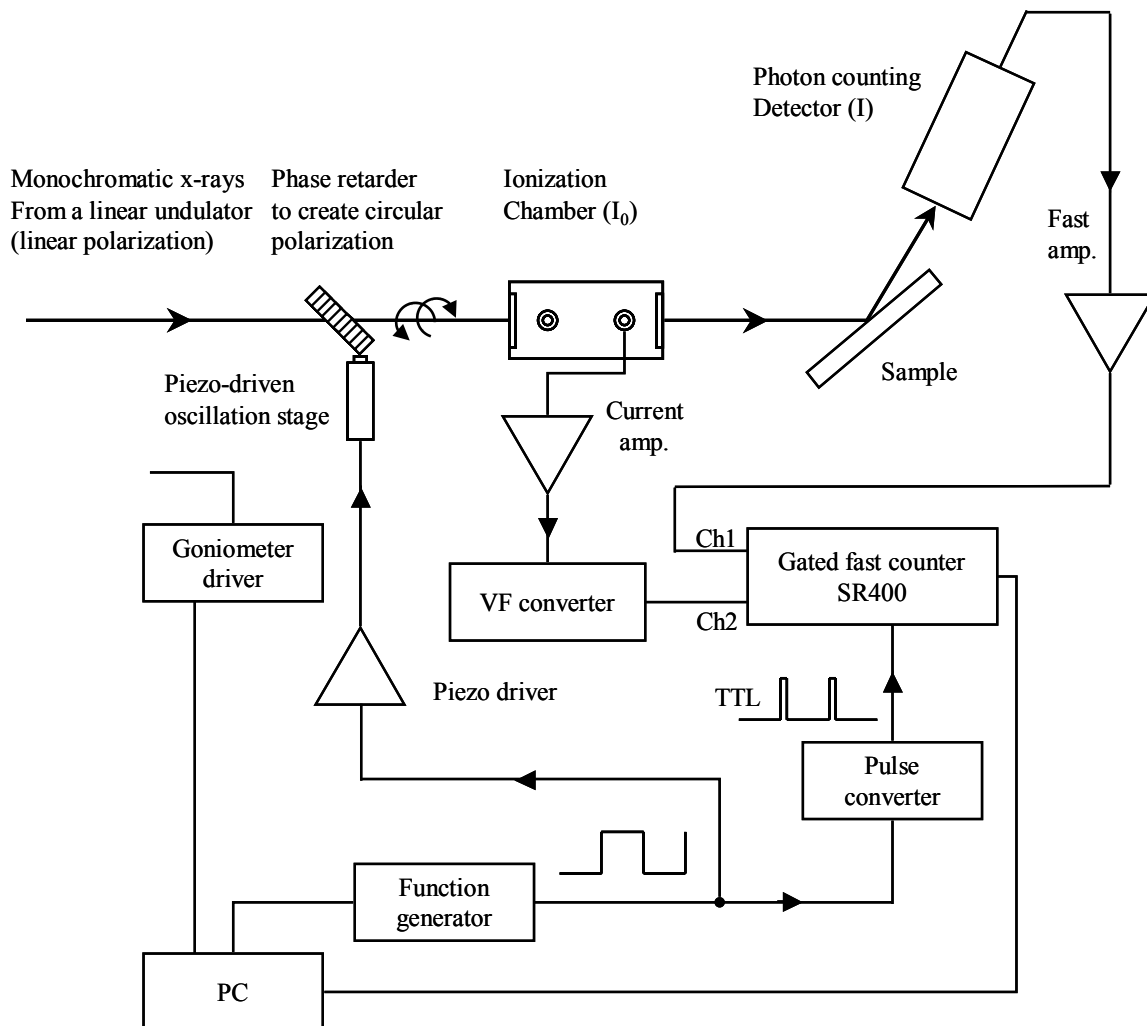


図 2.2 APD を用いた磁気散乱測定システムの構成

磁気散乱測定に必要な左右の円偏光はピエゾ駆動のステージに載せたダイヤモンド移相子により作り出す[14]。

① このピエゾ素子にファンクション・ジェネレータから矩形波または台形波を入力しダイヤモンド移相子を 220 反射のブラッグ角周りに $\pm \Delta\theta$ の角度で回転振動させることにより左右円偏光を交互に切り替える。この振り角 $\Delta\theta$ は使用する X 線波長により決定される。

② ピエゾ素子へ送ったものと同じ矩形波をパルスコンバータにより TTL タイミングパルスに変換し、高速カウンター (Stanford Research Systems SR400 Dual Channel Gated Photon Counter) にも送る。カウンターはこの信号を同期信号として用い、APD 検出器が受けた散乱 X 線強度の出力信号で検出した計数値を X 線の土ヘリシティごとに Ch.1 内で順送りに記録する (I^\pm)。

③ 同様にダイヤモンド移相子の下流に位置するイオンチャンバの出力も V-F コンバータにより TTL パルスに変換し、ダイヤモンド移相子の振動と同期して SR400 の Ch.2 に記録し、ビーム強度モニター (I_0^\pm) とする。

2.2 APD 素子の特性

測定に用いた検出器の APD 素子 (浜松ホトニクス SiAPD SPL 1518) は p⁺/π/p/n 構造を持ち、X 線は n 側から入射する (下図)。この APD 素子と周波数帯域 1GHz のアンプから成る検出器は株式会社リガクが作成した試作品である。

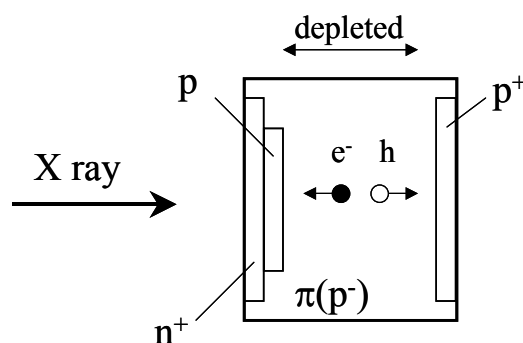


図 2.3 X 線と APD の位置関係

検出領域は 3×5 mm で、検出器には厚さ 15 μm の Al 窓がついており可視光を遮蔽する。APD に印加する逆バイアス電圧は 442.6 V で使用した。この場合、X 線が電荷キャリア (電子-電子空孔対) に変換される電荷空乏層の厚さは 130 - 140 μm となる。Si の吸収係数は CoK 端 7720 eV の X 線に対して 160.94 cm⁻¹ である。一方今回用いた

APD の空乏層の厚さは 0.13 mm として $\left(1 - \frac{I}{I_0}\right) \times 100 = \left(1 - e^{-160.94 \times 0.013}\right) \times 100 \approx 87.7\%$

となり吸収効率は約 87.66%となる。同様に、CuK 端 8992 eV の X 線の場合吸収効率は約 74%となる。APD 検出器はその特徴として電子空乏層において X 線光子の吸収により生成された電子が印加された電場により加速され次々に他の電子と衝突したとき出すという内部増幅効果を持つ。今回用いた APD 素子の内部増幅度は 100 である。この内部増幅された電子は十分な逆バイアス電圧が印加されている場合速度が $\sim 10^7$ cm/s 程度になる。このとき 100 μm を移動するのに 1 ns かかることになる。用いた APD 素子 (空乏層 130 μm) から出力される信号のパルス幅は 2 ns でありほぼ上記の関係に合致すると考えられる。

APD 検出器の内部増幅により通常のフォトダイオードでは不可能であった 1 個の X 線光子による高速パルス信号も検出可能になったが、測定系の下流において信号処理に十分な波高を得るためには更に増幅させる必要がある。そのため使用した APD 検出器には高周波プリアンプが組み込まれている。

APD からのパルス信号を増幅する周波数帯域 1GHz のプリアンプの利得は約 200 倍で、ノイズ (アンプノイズ+暗電流) はアンプ出力側で 2~4 mV である。エネルギー 8 keV の X 線に対する出力波高は約 20 mV である。また APD の出力パルス幅が約 2 ns と狭く、通常の波高弁別器カウンターでは計測できないため Stanford Electrics 社の高速カウンター (SR400 Dual Channel Gated Photon Counter) を採用した。このカウンターはカウントレート 200 MHz、pair pulse 分解能 5 ns である。APD 検出器のリニアリティカーブを示す。

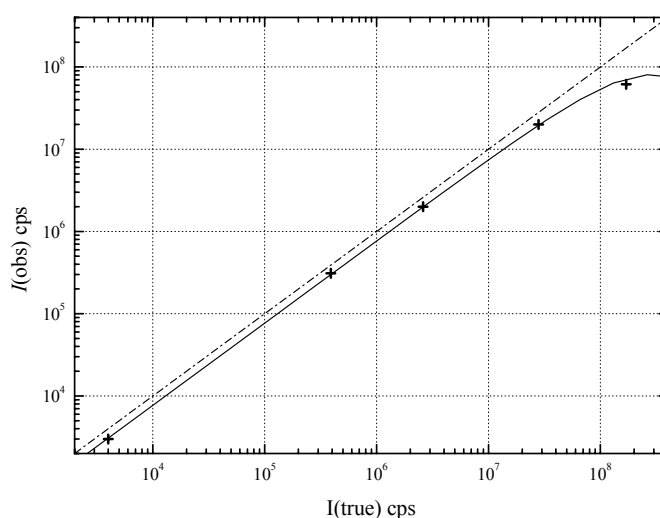


図 2.4 APD 検出器の直線性
(データ提供：理学電機株式会社 X 線研究所)

破線は数え落としのない理想的な検出器の曲線、シンボルは実験値、実線は不感時間を 3.5 ns とした場合の計算曲線である。この曲線から計数率 $\sim 3 \times 10^7$ cps まで直線性が保たれていることが判る。

2.3 X線ダイヤモンド位相子

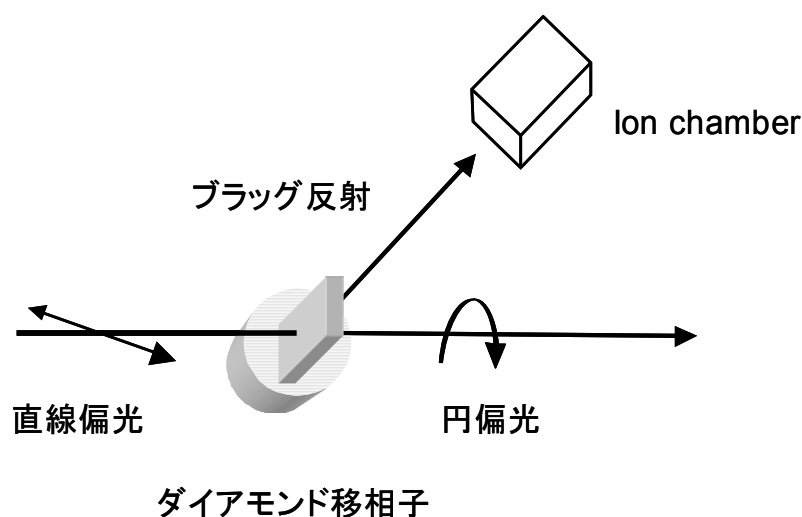


図 2.5 位相子による円偏光発生

シリコンやダイヤモンドのような完全性が高く X 線の散乱に対して動力的散乱理論が適用されるような結晶はブラッグの回折条件の近傍で用いれば光学的異方性によりその透過光の π 偏光成分と σ 偏光成分の間に位相差を生じる[15]。この性質を利用すれば直線偏光である放射光を左右円偏光に変換する位相子 ($\lambda/4$ 板) として用いることができる。透過光の位相差は次式で表すことができる[16]。

$$\delta = -\frac{\pi}{2} \left[\frac{r_e^2 \operatorname{Re}(F_h F_{\bar{h}}) \lambda^3 \sin(2\theta_B)}{\pi^2 V^2 (\theta - \theta_B)} \right] t = -A \frac{\pi}{2} \frac{t}{\Delta\theta}$$

ここで $F_h, F_{\bar{h}}$ はそれぞれ hkl 反射と $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 反射に対する結晶構造因子、 V は単位胞の体積、 θ_B はブラッグ角、 θ は入射 X 線の視斜角、 t は移相子結晶を通る X 線の光路長、 $\Delta\theta$ はブラッグ角からのズレ角 (オフセット角) である。この位相差が 45° となるようにその厚さを選ぶことにより移相子を透過した X 線は円偏光になる。

位相子を用いる大きな利点としては 2 つの点が挙げられる。一つはヘリカルアンジュレータのような挿入光源で作られ出される円偏光は光学系の下流に位置するモノクロ

メータや集光ミラーなどの光学素子により偏光度が低下するが、一方ダイヤモンド位相子を用いる方法ではモノクロメータの下流、集束ミラーの上流において円偏光を作り出すため円偏光度が落ちない点である。二点目は円偏光のヘリシティの切り替えや使用する X 線エネルギーの変化に対応するのに位相子結晶の角度を変えるだけでよいという点である。

2.4 同期測定

図 2.2 に示したように測定はファンクション・ジェネレータからダイヤモンド位相子の回転振動を駆動させるために送る信号を分岐し、高速カウンター SR400 にも送ることによりカウンターに入力する APD 検出器出力 (I^{\pm}) と試料上流に設置されたイオンチャンバ出力 (I_0^{\pm}) の 2 つの強度信号を位相子振動 (=円偏光ヘリシティの振動) と同期させて記録していく。このときの測定時間のタイミングチャートを図 2.6 に示す。

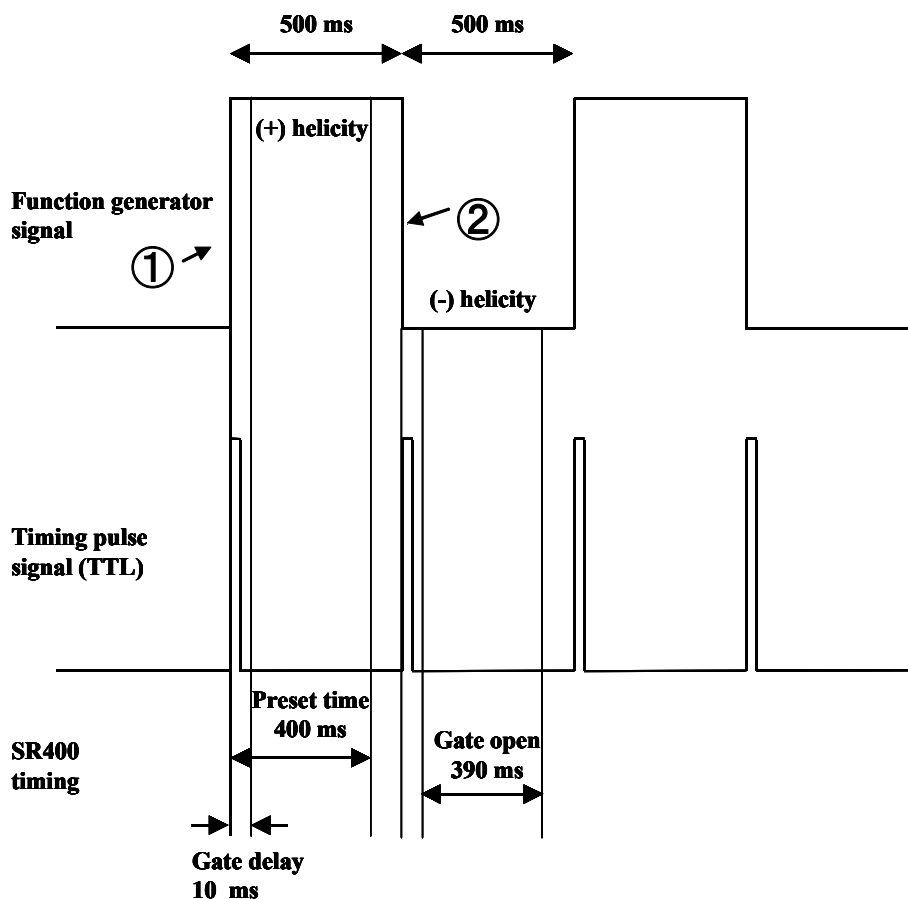


図 2.6 同期測定のタイミングチャート

図 2.6 において、上段の矩形がファンクション・ジェネレータの出力波形である。波形の振幅がダイヤモンド位相子の回転角度を決定するため、使用する X 線エネルギーによって変化する。この波形の上下の平坦部分で円偏光が作り出される。上下平坦部の高出力側が+ヘリシティ、低出力側が-ヘリシティにそれぞれ対応する。中段はこのファンクション・ジェネレータからの出力を同期信号として高速カウンターSR400に入力するためにパルスコンバータを通して TTL パルスに変換したものである。このパルスコンバータはファンクション・ジェネレータの出力波形がコンバータで設定したある閾値を横切るときに TTL パルスを出力する。上図ではコンバータへの入力信号の立ち上がり (①) と立ち下がり (②) の両方で TTL パルスを発生させる。高速カウンターSR400はこの TTL パルスを受け取ることにより計測を開始する。一点の測定の最小単位は+ヘリシティ入射による散乱強度測定一回と-ヘリシティ入射による散乱強度測定一回の組 (1 サイクル) であり、それはダイヤモンドの回転振動一回に相当する。これは図 2.6 (上段) で言えば矩形波の一波長分にあたる。そして半波長の計測は予め設定された 3 つの時間 (preset time、gate delay、gate open) に沿っておこなわれる。図 2.6 の下段に高速カウンターSR400におけるタイミングを示す。これらの時間の数値はダイヤモンド位相子の回転振動が 1 秒に 1 回 (1 Hz) の場合の例である。TTL パルスでスタートした計測はまず gate delay 時間だけ計測を待ったのち gate open 時間の間計測して終了する。この 2 つの時間はその合計が preset time 以内に収まるように決定する。さらにこの preset time が終了したのち、計測された強度データがメモリへと送られるため時間 (dwell time) が最低でも 2 ms 必要となる。そのためダイヤモンドの回転振動の周波数が 1 Hz のときは preset time が 498 ms 以内になるよう設定した。

第 3 章 X 線鏡面反射、共鳴 X 線磁気散乱及び X 線磁気円二色性の理論

3.1 X 線鏡面反射

3.1.1 表面からの X 線鏡面反射

まず X 線による構造解析において基本的な量である原子散乱因子について述べる [15]。散乱体の電子密度分布をフーリエ変換したものを構造因子と呼ぶ。

$$\int_{\text{散乱体}} \rho(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (3.1)$$

これに電子 1 個による散乱振幅 $-r_e$ をかけたものが散乱振幅となる。

また原子 1 個による散乱に対する構造因子は原子散乱因子と呼ばれる。

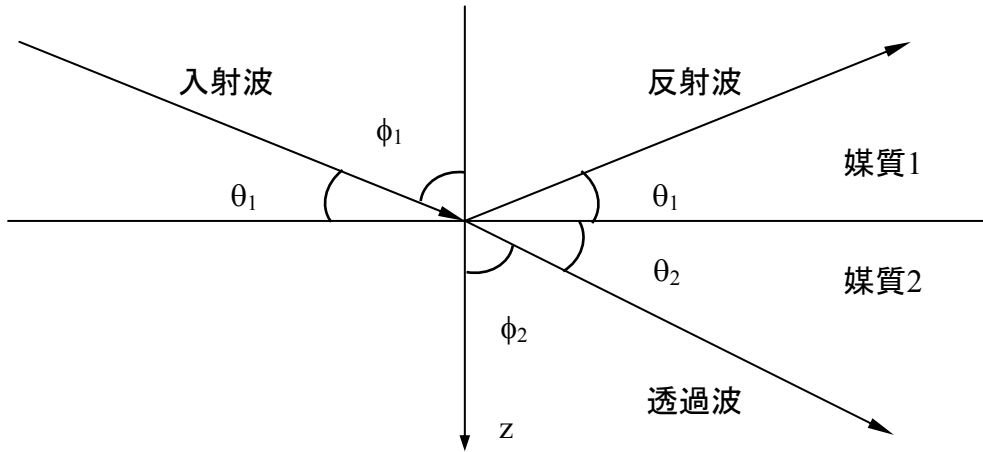
$$f(\mathbf{K}) = \int_{\text{原子}} \rho(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (3.2)$$

これに $-r_e$ をかけたものが原子による散乱振幅である。原子散乱因子は無次元量であり、吸収を考えないときには実数である。ただし入射 X 線の振動数が原子の吸収端に近い、つまり入射 X 線のエネルギーが散乱体の K 殻、L 殻電子を励起させるエネルギーに近いときには原子散乱因子は修正を受け

$$f = f_0 + f' + if'' \quad (3.3)$$

と複素数となる。 f' と f'' は異常分散項と呼ばれる。

均一な密度をもつ媒体の表面における X 線鏡面反射は Fresnel の反射理論により取り扱われる。



表面に入射した X 線の一部は反射され、他は媒質中に透過する。入射 X 線として次式のような平面波を仮定する。

$$E_1(Z) = E_1(0) \exp\{i[\omega t - (k_{1,x}x + k_{1,z}z)]\} \quad (3.4)$$

z 軸は表面に対し垂直で媒質内部方向、x 軸は入射面と表面の交線に平行である。媒質表面からの鏡面反射波と媒質中に進行した透過・屈折波はそれぞれ

$$E_1^R(Z) = E_1^R(0) \exp\{i[\omega t - (k_{1,x}x - k_{1,z}z)]\} \quad (3.5)$$

$$E_2(Z) = E_2(0) \exp\{i[\omega t - (k_{2,x}x + k_{2,z}z)]\} \quad (3.6)$$

と書くことができる。ここで $k_1 (= 2\pi/\lambda_1)$ と $k_2 (= 2\pi/\lambda_2)$ は入射ベクトルと透過ベクトルの絶対値である。視斜角 θ_1 は小さいので

$$k_2^2 = n^2 k_1^2 = n^2 \left(\frac{k_{1,z}^2}{\cos^2 \theta_1} \right) \cong k_{1,x}^2 (1 - 2\delta_2 - 2i\beta_2 + \theta_1^2) \quad (3.7)$$

ここで n は媒質の屈折率

$$n = 1 - \delta - i\beta \quad (3.8)$$

である。 δ と β はそれぞれ量子力学的分散と媒質の吸収に関連する。ただし、

$$\delta = \frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} N_A \frac{\rho}{A} \sum_i (Z_i + f_i') \quad (3.9)$$

$$\beta = \frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} N_A \frac{\rho}{A} \sum_i f_i'' \quad (3.10)$$

i についての和は媒質中の全元素についてとる。ここで

N_A : アボガドロ定数

r_0 : 古典電子半径

λ : X線の波長

ρ : 密度

A : 分子量

Z_i : 原子番号

f_i' : 原子散乱因子異常分散項の実部

f_i'' : 原子散乱因子異常分散項の虚部

δ と β は電子密度 ρ_{el} と線吸収係数 μ を用いて

$$\delta = \frac{\lambda^2 \rho_{el} r_0}{2\pi} \quad (3.11)$$

$$\beta = \frac{\mu \lambda}{4\pi} \quad (3.12)$$

と書ける。

大抵の物質では δ は 10^{-5} のオーダーであり、 $\lambda \sim 1 \text{ \AA}$ の波長において $\beta = (10^{-2} \sim 10^{-3}) \times \delta$ であるため β は無視しても大きな誤差は生じない。

(3.5)式からわかるように X 線に対する物質の屈折率は 1 より小さい。反射・屈折面の両側の物質 1、2 の屈折率をそれぞれ n_1 、 n_2 とするとスネルの法則は

$$n_1 \cos \theta_1 = n_2 \cos \theta_2 \quad (3.13)$$

と書ける。物質 1 が真空または空気であれば $n_1 = 1$ とかけ、

$$\cos \theta_2 = \frac{1}{n_2} \cos \theta_1 \quad (3.14)$$

$n_2 < 1$ より

$$\cos \theta_c = n_2 \quad (3.15)$$

となる。 $\theta_1 < \theta_c$ では全反射が起こる。一般にこの全反射臨界角 θ_c は 10^{-3} mrad程度である。

$$\cos \theta_c \approx 1 - \frac{1}{2} \theta_c^2 \quad (3.16)$$

と近似して β (吸収)を無視するとスネルの法則と式(3.5)より

$$\theta_c = \sqrt{2\delta} \quad (3.17)$$

(3.11)式より $\theta_c(\delta)$ はX線の波長と電子密度のみに依存する。

表面において波動ベクトルは連続であるため

$$k_{2,x} = k_{1,x} \approx k_1 \quad (3.18)$$

入射角 θ_1 が小さな場合

$$k_{2,z} = \left\{ k_{1,x}^2 (1 - 2\delta_2 - 2i\beta_2 + \theta_1^2) - k_1^2 \right\}^{1/2} \cong k_1 (\theta_1^2 - 2\delta_2 - 2i\beta_2)^{1/2} \quad (3.19)$$

ここで

$$f_2 = (\theta_1^2 - 2\delta_2 - 2i\beta_2)^{1/2} \quad (3.20)$$

とおくと、屈折波の式(3.6)は

$$E_2(z) = E_2(0) \exp[i(\omega t - k_{2,x}x)] \exp[-ik_1 f_2 z] \quad (3.21)$$

となる。

まず電場ベクトルが入射面に対し垂直方向を向いた σ 偏光成分について考える。反

射波に対する Fresnel 係数(振幅反射率) $F_{1,2}$ は Maxwell 方程式と電場の境界条件より

$$F_{1,2} = \frac{E_1^R}{E_1} = \frac{\cos \phi_1 - \sqrt{\frac{\kappa_2 \mu_1}{\kappa_1 \mu_2}} \cos \phi_2}{\cos \phi_1 + \sqrt{\frac{\kappa_2 \mu_1}{\kappa_1 \mu_2}} \cos \phi_2} \quad (3.22)$$

ここで ϕ_1 , ϕ_2 はそれぞれ X 線の入射角と屈折角であり $\kappa (= \kappa_0 \times \kappa_r)$, $\mu (= \mu_0 \times \mu_r)$ はそれぞれ媒質の誘電率、透磁率である。いま媒質 1 は真空または空気であるから κ_1 は 1 とおけ、 μ_r は常に ~ 1 である。よって(3.22)式は

$$\frac{E_1^R}{E_1} = \frac{\cos \phi_1 - \sqrt{\kappa_2} \cos \phi_2}{\cos \phi_1 + \sqrt{\kappa_2} \cos \phi_2} \quad (3.23)$$

と書きかえられる。全反射を起こす条件下では $\sin \phi_2 > 1$ であり、 ϕ_2 は虚数となる。このときは

$$\cos \phi_2 = \sqrt{1 - (\sin^2 \phi_1) / \kappa_2} = \sqrt{1 - (1 - \sin^2 \theta_1) / \kappa_2} \quad (3.24)$$

となり、(3.23)式は

$$\frac{E_1^R}{E_1} = \frac{\sin \phi_1 - (\kappa_2 - 1 + \sin^2 \theta_1)^{1/2}}{\sin \phi_1 + (\kappa_2 - 1 + \sin^2 \theta_1)^{1/2}} \quad (3.25)$$

と書ける。

ここで κ_2 は屈折率をもちいて次のようにあらわすことができる。

$$\kappa = (1 - \delta - i\beta)^2 \quad (3.26)$$

これを(3.25)式に適用し

$$\frac{E_1^R}{E_1} = \frac{\theta_1 - (\theta_1^2 - 2\delta - 2i\beta)^{1/2}}{\theta_1 + (\theta_1^2 - 2\delta - 2i\beta)^{1/2}} = \frac{\theta_1 - f_2}{\theta_1 + f_2} = \frac{f_1 - f_2}{f_1 + f_2} \quad (3.27)$$

$$a - ib = (\theta^2 - 2\delta - 2i\beta)^{1/2} \quad (3.28)$$

とおくと a, b はそれぞれ

$$\begin{aligned} a &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \left[(\theta_1^2 - \theta_c^2) + 4\beta_2^2 \right]^{1/2} + (\theta_1^2 - \theta_c^2) \right\}^{1/2} \\ b &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \left[(\theta_1^2 - \theta_c^2) + 4\beta_2^2 \right]^{1/2} - (\theta_1^2 - \theta_c^2) \right\}^{1/2} \end{aligned} \quad (3.29)$$

と表される。(3.25)式にこれを代入して、2乗すると入射強度 I_0 に対する反射強度 I_R が次式のように得られる。

$$\frac{I_R}{I_0} = \left| \frac{E_1^R}{E_1} \right|^2 = \frac{(\theta_1 - a)^2 + b^2}{(\theta_1 + a)^2 + b^2} = \frac{h - \left(\frac{\theta_1}{\theta_c}\right) \sqrt{2}(h-2)^{1/2}}{h + \left(\frac{\theta_1}{\theta_c}\right) \sqrt{2}(h-2)^{1/2}} \quad (3.30)$$

ここで

$$h = \left(\frac{\theta_1}{\theta_c}\right)^2 + \left\{ \left[\left(\frac{\theta_1}{\theta_c}\right)^2 - 1 \right]^2 + \left(\frac{\beta}{\delta}\right)^2 \right\}^{1/2} \quad (3.31)$$

次に、 π 偏光成分について考える。 π 偏光は電場ベクトルが入射面内に平行である。このとき、(3.23)式に相当する式は

$$\frac{E_1^R}{E_1} = \frac{\sqrt{\chi_2} \cos \phi_1 - \cos \phi_2}{\sqrt{\chi_2} \cos \phi_1 + \cos \phi_2} \quad (3.32)$$

で表される。これを先と同様に取り扱おうと、

$$\frac{I_R}{I_0} = \frac{(\theta_1 - 2\delta\theta_1 - a)^2 + (b - 2\beta\theta_1)^2}{(\theta_1 - 2\delta\theta_1 + a)^2 + (b + 2\beta\theta_1)^2} \quad (3.33)$$

が得られる。 δ, β は微小量であるから、この式の代わりに(3.30)式を用いることもできる。

3.1.2 多層膜構造からの X 線鏡面反射率

次に、 n 層の均一な媒質からなる滑らかな境界面をもつ多層膜構造からの X 線の反射を考える。Parrat は表面に対し平行な複数の層を積層した多層膜構造について Fresnel の反射係数、透過係数を求め、これらの間に成立する漸化式を解くことにより不均質な媒体や多層構造からの X 線鏡面反射を取り扱った[17]。

それぞれの膜の厚さを d_n とし、媒質 1 (空気または真空) の厚さは考えない。 $n-1$ 層/ n 層の境界における電場ベクトルの連続性より

$$a_{n-1}E_{n-1} + a_{n-1}^{-1}E_{n-1}^R = a_n^{-1}E_n + a_nE_n^R \quad (3.34)$$

$$(a_{n-1}E_{n-1} - a_{n-1}^{-1}E_{n-1}^R)f_{n-1}k_1 = (a_n^{-1}E_n - a_nE_n^R)f_nk_1 \quad (3.35)$$

(3.35)は(3.19)と同様にして得られる。ここで、係数 a_n は膜厚 d_n の1/2の位置に相当する深さにおける波の位相であり(3.21)より

$$a_n = \exp\left(-ik_1f_n \frac{d_n}{2}\right) = \exp\left(-i\frac{\pi}{\lambda}f_nd_n\right) \quad (3.36)$$

である。

漸化式(3.34)、(3.35)を解くため、

$$R_{n-1,n} = a_n^4 \left[\frac{R_{n,n+1} + F_{n-1,n}}{R_{n,n+1}F_{n-1,n} + 1} \right] \quad (3.37)$$

を用いる。ここで、

$$R_{n,n+1} = a_n^2 \left(\frac{E_n^R}{E_n} \right) \quad (3.38)$$

$$F_{n-1,n} = \frac{f_{n-1} - f_n}{f_{n-1} + f_n}$$

である。(3.37)は n-1 層/n 層界面における反射の振幅を示している。この式を条件

$$\begin{aligned} R_{n,n+1} &= 0 \\ a_1 &= 1 \end{aligned} \quad (3.39)$$

のもと最下層から適用して解き $R_{1,2} = E_1^R / E_1$ を得る。入射強度に対する反射強度比

I_R / I_0 は $R_{1,2}$ から実数部と虚数部を分離することで得られる。

$$\frac{I_R}{I_0} = \left| \frac{E_1^R}{E_1} \right|^2 \quad (3.40)$$

これから得られる反射率プロファイルは連続した極大極小をもつ。これは膜厚を特徴づけるもので膜厚フリッジ（または Kiessig fringe）と呼ばれる。

3.2 共鳴を考慮した X 線散乱振幅

X 線磁気散乱は X 線の電磁場と電子のスピンおよび電子の軌道角運動量との間に働く磁気相互作用によって生ずる散乱であり、X 線電場と電子の相互作用による通常の X 線電荷散乱に比べてその強度は非常に弱い。磁気散乱振幅は電荷散乱振幅と比べると因子（入射 X 線エネルギー／電子の静止質量エネルギー）

$$\tau = \frac{\hbar q}{mc} = \frac{E}{mc^2} \quad (3.41)$$

程度の大きさになる。エネルギー 10 keV の硬 X 線に対して、この値は約 0.02 程度になる。さらに X 線の強度は振幅の 2 乗に比例するため、磁気散乱強度の電荷散乱強度に対する比は 10^{-4} 程度となる。この散乱強度の弱さを克服する方法として円偏光 X 線の使用と元素の吸収端エネルギーの X 線を用いた共鳴（あるいは異常）散乱が挙げられる。

通常、直線偏光 X 線を用いた電荷散乱と磁気散乱ではその散乱波に 90° の位相ずれが生じる。そのために電荷散乱と磁気散乱の間で干渉が起こらない。この場合の散乱強度は単にそれぞれの散乱振幅の 2 乗を足し合わせたものとなる。しかし円偏光 X 線を用いることにより電荷散乱—磁気散乱間の位相ずれに変化が生じ、結果干渉散乱を得ることができる。

また元素の吸収端エネルギーを持つ X 線を用いると電子が中間状態へ遷移する過程が散乱振幅に寄与する共鳴散乱が起こる。そのためその散乱波の振幅と位相は入射 X 線の振動数に依存する。吸収端の X 線エネルギーに対して散乱振幅は一般に

$$f = f_c^0 + f' + if'' \quad (3.42)$$

で表される。ここで f_c^0 は通常のコムソン散乱振幅 (原子番号)、 $f' + if''$ は分散過程と吸収過程からの寄与を表す項であり異常分散項と呼ぶ。共鳴 X 線磁気散乱 (RXMS : Resonant X-ray Magnetic Scattering) は X 線の電磁場と電子のスピンおよび電子の軌道角運動量との間に働く磁気相互作用によって生ずる X 線磁気散乱の一つであり、上記異常分散補正項の中に共鳴元素の磁化に依存する項があるために生ずる。1 原子に対する共鳴散乱振幅はそれぞれ分離した 3 つの項の和として書かれる [18]。

$$\begin{aligned} f_r^{E1}(E) &= f_0(E) + f_{circ}(E) + f_{lm}(E) \\ &= -\left(\frac{3}{4\pi q}\right) \left\{ (\boldsymbol{\varepsilon}' \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) [F_{+1}^1 + F_{-1}^1] + i(\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \mathbf{m} [F_{-1}^1 - F_{+1}^1] + (\boldsymbol{\varepsilon}' \cdot \mathbf{m})(\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{m}) [2F_0^1 - F_{+1}^1 - F_{-1}^1] \right\} \end{aligned} \quad (3.43)$$

ここで \mathbf{m} は磁気モーメントの方向を示す単位ベクトルであり、 $\boldsymbol{\varepsilon}$ および $\boldsymbol{\varepsilon}'$ はそれぞれ散乱前と散乱後の X 線の偏光単位ベクトルである。また F_v^1 は磁気量子数の変化が v である双極子遷移強度を表す。

$$\begin{aligned} F_v^1 &= \sum_{\alpha, \eta} \left(\frac{p_\alpha p_\alpha(\eta) \Gamma_x / \Gamma(\eta)}{x(\alpha, \eta) - i} \right) \\ x(\alpha, \eta) &= \frac{[\varepsilon(\eta) - \varepsilon(\alpha) - \hbar\omega]}{[\Gamma(\eta)/2]} \end{aligned} \quad (3.44)$$

ここで

- α イオンの基底状態
- η 内殻にホールを残して励起された電子の励起状態
- Γ_x 励起状態 η から基底状態 α へと移る電気双極子の放射減衰の部分エネルギー幅
- $\Gamma(\eta)$ 励起状態 η のトータルエネルギー幅
- $x(\alpha, \eta)$ は共鳴からの偏差を $\Gamma(\eta)/2$ 単位で表したものの

F_v^1 は X 線のエネルギーに強く依存し、X 線吸収端近傍でのみ大きな値を持つ。そのため共鳴 X 線磁気散乱には元素選択性がある。共鳴散乱振幅の第一項は共鳴電荷散乱振幅（異常分散項）であり磁化に無関係である。第二項および第三項は共鳴磁気散乱振幅である。第二項は局所磁気モーメントの射影に対し線形、第三項は二次で比例する。よって第二項の $i(\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \mathbf{m}$ は磁化の反転や円偏光 X 線のヘリシティ反転により符号が変わる一方、第三項 $(\boldsymbol{\varepsilon}' \cdot \mathbf{m})(\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{m})$ は磁化やヘリシティの反転によってもその符号は変わらない。この磁場あるいは X 線ヘリシティの反転に対する第二項と第三項の偶奇性の違いを利用することで磁気散乱（電荷—磁気干渉散乱）を純電荷散乱から分離することが可能となる。X 線吸収実験の場合第二項は X 線磁気円二色性（X-ray magnetic circular dichroism）を、第三項は X 線磁気直線二色性（X-ray magnetic linear dichroism）をそれぞれ与える。非共鳴散乱も含めたトータルの散乱振幅は上記共鳴散乱振幅 f_r^{E1} に通常トムソン電荷散乱振幅と非共鳴散乱振幅を足し合わせたものとなり次のように書ける。

$$f = -r_e f_{atom}(k)(\boldsymbol{\varepsilon}' \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) + r_e i \frac{\hbar \omega}{mc^2} (\mathbf{F}_s \cdot \mathbf{B} + \mathbf{F}_l \cdot \mathbf{B}_0) + f_r^{E1} \quad (3.45)$$

ここで r_e は古典電子半径、 $f_{atom}(k)$ は原子散乱因子、 \mathbf{F}_s と \mathbf{F}_l はそれぞれスピン磁気と軌道磁気に対する結晶構造因子である。またベクトル \mathbf{B} および \mathbf{B}_0 は次式で表される。

$$\begin{aligned} \mathbf{B} &= (\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon}) - (\hat{\mathbf{q}}' \times \boldsymbol{\varepsilon}') \times (\hat{\mathbf{q}} \times \boldsymbol{\varepsilon}) + (\hat{\mathbf{q}}' \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(\hat{\mathbf{q}}' \times \boldsymbol{\varepsilon}') - (\hat{\mathbf{q}} \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(\hat{\mathbf{q}} \times \boldsymbol{\varepsilon}) \\ \mathbf{B}_0 &= (\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon})_{\perp} = \hat{\mathbf{k}} \times ((\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon}) \times \hat{\mathbf{k}}) = (\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon}) - \hat{\mathbf{k}} [\hat{\mathbf{k}} \cdot (\boldsymbol{\varepsilon}' \times \boldsymbol{\varepsilon})] \end{aligned} \quad (3.46)$$

$\hat{\mathbf{q}}$ と $\hat{\mathbf{q}}'$ はそれぞれ散乱前と散乱後の X 線の方向を示す単位ベクトル、 $\hat{\mathbf{k}}$ は散乱単位ベクトルである。双極子遷移強度 F_v^1 が複素数であることから共鳴散乱を起している原子の散乱振幅は次のように書くことができる。

$$f = (\boldsymbol{\varepsilon}'^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}) (f_c^0 + f_c' + i f_c'') + i (\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \mathbf{m} (f_m' + i f_m'') + (\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \mathbf{m})(\boldsymbol{\varepsilon} \times \mathbf{m}) (f_q' + i f_q'') \quad (3.47)$$

(3.47)では非共鳴磁気散乱振幅は共鳴磁気散乱振幅に比べて小さいため省略してある。ここで以下の置き換えを行っている。

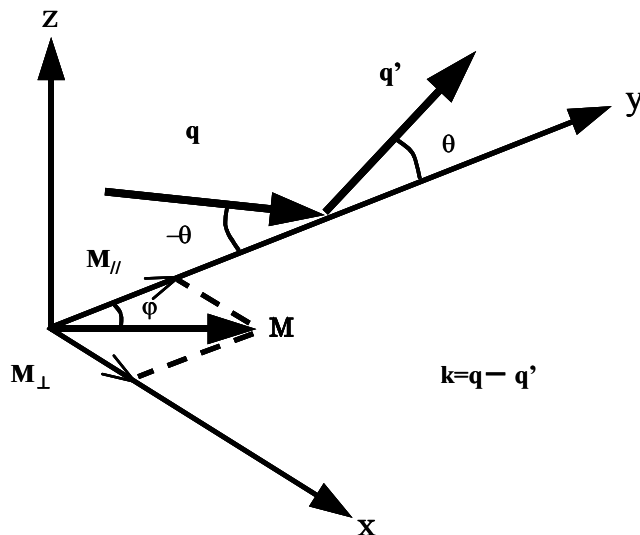
$$\begin{aligned}
 -\frac{f_{atom}}{r_e} &\rightarrow f_c^0 \\
 -\left(\frac{3}{4\pi q r_e}\right)[F_{+1}^1 + F_{-1}^1] &\rightarrow f_c' + if_c'' \\
 -\left(\frac{3}{4\pi q r_e}\right)[F_{-1}^1 - F_{+1}^1] &\rightarrow f_m' + if_m'' \\
 -\left(\frac{3}{4\pi q r_e}\right)[2F_0^1 - F_{+1}^1 - F_{-1}^1] &\rightarrow f_q' + if_q''
 \end{aligned}
 \tag{3.48}$$

古典電子半径 r_e で割ることで f を無次元量としている。実験で観測される量は式(3.47)の散乱振幅に位相項 $\exp(i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r})$ を掛けて得られる構造因子 F の 2 乗に比例するため、(3.47)の電荷項 (第一項)、共鳴一次項 (第二項)、二次項 (第三項) およびこれらの項が掛け合わされた干渉項が含まれる。特に電荷項と共鳴第一項の干渉項は磁場反転あるいはヘリシティ反転した 2 つの実験の強度差から取り出すことが出来る。また共鳴一次と共鳴二次の干渉項は非常に弱いため無視することが出来る。よって(3.7)の右辺第三項を略した次の形を用いることとする。

$$f = (\boldsymbol{\varepsilon}'^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon})(f_c^0 + f_c' + if_c'') + i(\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \mathbf{m}(f_m' + if_m'')
 \tag{3.49}$$

3.3 散乱振幅の偏光依存性と円偏光

共鳴を考慮した散乱振幅(3.49)には散乱前後の X 線の単位偏光ベクトル $\boldsymbol{\varepsilon}$, $\boldsymbol{\varepsilon}'$ が含まれている。これは電荷散乱、磁気散乱とも X 線の偏光状態に依存することを示している。散乱面に垂直な偏光である σ 偏光とこれに垂直な π 偏光の 2 成分について考える。



散乱角を θ とし入射 X 線と散乱 X 線の波数ベクトルをそれぞれ \mathbf{q}, \mathbf{q}' とし散乱は yz 平面内で起こるとする。

電荷散乱項の偏光依存は $(\boldsymbol{\varepsilon}' \cdot \boldsymbol{\varepsilon})$ である。このスカラー積は $\sigma \rightarrow \sigma'$ (つまり $\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}_\sigma \rightarrow \boldsymbol{\varepsilon}' = \boldsymbol{\varepsilon}'_\sigma$) と $\pi \rightarrow \pi'$ ($\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}_\pi \rightarrow \boldsymbol{\varepsilon}' = \boldsymbol{\varepsilon}'_\pi$) の場合のみ有限の値を持つ。

$(\boldsymbol{\varepsilon}'^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon})$	$\boldsymbol{\varepsilon}_\sigma$ (入射: σ 偏光)	$\boldsymbol{\varepsilon}_\pi$ (入射: π 偏光)
$\boldsymbol{\varepsilon}'_\sigma$ (散乱: σ 偏光)	1	0
$\boldsymbol{\varepsilon}'_\pi$ (散乱: π 偏光)	0	$(\hat{\mathbf{q}} \cdot \hat{\mathbf{q}}') = \cos 2\theta$

一方共鳴項の偏光依存は $(\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \boldsymbol{\varepsilon})$ であり、このベクトル積は $\sigma \rightarrow \pi'$ と $\pi \rightarrow \sigma'$ および $\pi \rightarrow \pi'$ の場合有限の値を持つ。

$(\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \mathbf{m}$	$\boldsymbol{\varepsilon}_\sigma$ (入射: σ 偏光)	$\boldsymbol{\varepsilon}_\pi$ (入射: π 偏光)
$\boldsymbol{\varepsilon}'_\sigma$ (散乱: σ 偏光)	0	$\hat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{m}$
$\boldsymbol{\varepsilon}'_\pi$ (散乱: π 偏光)	$-\hat{\mathbf{q}}' \cdot \mathbf{m}$	$-\hat{\mathbf{x}} \cdot \mathbf{m} \sin 2\theta$

ただし共鳴磁気散乱の偏光依存性には磁気モーメント方向の単位ベクトル \mathbf{m} が含まれるため磁化の方向に影響される。以下にその 2 つの場合を示す。

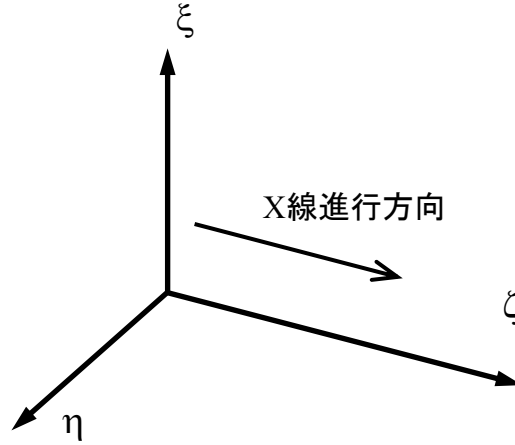
(1) 散乱面に垂直な磁化成分 (M_\perp)

共鳴項は前述の 3 つの散乱パターンのうち $\pi \rightarrow \pi'$ の場合のみが有限の値を持つ。この場合電荷散乱、磁気散乱ともに π 偏光であるために磁場反転により干渉項のみを取り出すことができる。ただし散乱角 θ が小さいときは $\sin 2\theta$ が効いてくるためその値は小さくなる。

(2) 散乱面が平行な磁化成分 (M_\parallel)

共鳴項は $\sigma \rightarrow \pi'$ と $\pi \rightarrow \sigma'$ の場合で有限の値を持ち、磁化が入射波あるいは散乱波の波数ベクトルと平行のとき最大値を取る。電荷散乱は散乱前後で偏光を変えないため強度に干渉項は現れず、散乱波の偏光解析によって電荷散乱と共鳴磁気散乱を分離しなければならない。

鏡面反射による共鳴磁気散乱実験は散乱角が小さいため、直線偏光を用いた場合電荷—磁気干渉強度は弱い。しかし直線偏光の代わりに σ 偏光と π 偏光の両成分を持つ円偏光を使用することによりその観測が可能となる。以下に円偏光を用いた場合の散乱の偏光依存を説明する。



X線は上図で ζ 軸方向へ進むとすると左右円偏光の単位偏光ベクトルは次のように書き表せる。

右円偏光

$$\mathbf{e}^+ = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{e}_\xi + i\mathbf{e}_\eta)\exp[i(k\zeta - \omega t)] \quad (3.50)$$

左円偏光

$$\mathbf{e}^- = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{e}_\xi - i\mathbf{e}_\eta)\exp[i(k\zeta - \omega t)] \quad (3.51)$$

右円偏光を ζ =定数平面上の電場（偏光）ベクトルを光源から進行方向を見たときに時計回りに回転する光と定義する。左円偏光は電場ベクトルを同様に見たときに反時計回りに回るものを言う。

この円偏光を用いた場合の共鳴項の偏光依存は次のように書ける。

$(\mathbf{e}'^* \times \mathbf{e}) \cdot \mathbf{m}$	\mathbf{e}^+	\mathbf{e}^-
\mathbf{e}'^+	$(-\mathbf{x} \sin 2\theta + i\mathbf{q}' + i\mathbf{q}) \cdot \mathbf{m}$	$(-\mathbf{x} \sin 2\theta - i\mathbf{q}' + i\mathbf{q}) \cdot \mathbf{m}$
\mathbf{e}'^-	$(-\mathbf{x} \sin 2\theta + i\mathbf{q}' - i\mathbf{q}) \cdot \mathbf{m}$	$(-\mathbf{x} \sin 2\theta - i\mathbf{q}' - i\mathbf{q}) \cdot \mathbf{m}$

この結果より散乱角 θ が小さいときは磁気モーメントの方向 \mathbf{m} と入射波および散乱波の波数ベクトルと平行であるときベクトル積が大きくなることが判る。 $\sin 2\theta$ が非常に小さく無視できると看做すとベクトル積は以下のように書ける。

$(\mathbf{e}'^* \times \mathbf{e}) \cdot \mathbf{m}$	\mathbf{e}^+	\mathbf{e}^-
\mathbf{e}'^+	$2i \cos \theta \cos \varphi$	0
\mathbf{e}'^-	0	$-2i \cos \theta \cos \varphi$

有限の値を持つベクトル積は磁気モーメントの y 軸方向成分に比例している。よってより強い干渉強度を得るためには散乱面に平行な磁化成分 ($M_{//}$) が大きくなるように磁場を印加する必要がある。測定は印加した磁場を固定し入射する円偏光ヘリシティを反転するか、ヘリシティを固定し印加磁場を反転させれば一次共鳴項の符号が反転するため干渉項による強度を取り出すことが出来る。以下に円偏光 X 線のヘリシティを反転したときの強度差を導出する。人工格子に対する電荷構造因子と磁気構造因子は(3.19)より

$$F_c(\mathbf{q}) = \sum_{\text{all atom}} (f_{cj}^0 + f'_{cj} + if''_{cj}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) \quad (3.52)$$

$$\mathbf{F}_m(\mathbf{q}) = \sum_{\text{all mag. atom}} \mathbf{m}_j (f'_m + if''_{mj}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) \quad (3.53)$$

と表すことができる。ここで \mathbf{r}_j は原子の位置ベクトルである。電荷構造因子(3.12)は全原子について、磁気構造因子(3.53)は共鳴している磁性原子について和をとる。全構造因子はこれらを足し合わせ

$$F^{\nu\nu'}(\mathbf{q}) = (\boldsymbol{\varepsilon}_{\nu'}^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{\nu}) F_c(\mathbf{q}) + i(\boldsymbol{\varepsilon}_{\nu'}^* \times \boldsymbol{\varepsilon}_{\nu}) \cdot \mathbf{F}_m(\mathbf{q}) \quad (3.54)$$

と書ける。ここで ν および ν' はそれぞれ入射波と散乱波円偏光の偏光状態を示す添字である。散乱強度は構造因子の 2 乗に比例する。+ヘリシティ円偏光を入射した場合その散乱波は+ヘリシティの場合と-ヘリシティの場合があるが散乱波の偏光解析を行わないため、その強度は

$$I^+(\mathbf{q}) = |F^{+,+}(\mathbf{q})|^2 + |F^{-,+,+}(\mathbf{q})|^2 \quad (3.55)$$

となり-ヘリシティ入射も同様に表すことができる。入射波のヘリシティを反転して測定した強度の差をとると

$$I^+(\mathbf{q}) - I^-(\mathbf{q}) = -2(\hat{\mathbf{q}}' \cos 2\theta + \hat{\mathbf{q}}) [F_c(\mathbf{q}) \mathbf{F}_m^*(\mathbf{q}) + F_c^*(\mathbf{q}) \mathbf{F}_m(\mathbf{q})] \quad (3.56)$$

となる。この差強度は干渉散乱が磁化について散乱面内の $(\hat{\mathbf{q}}' \cos 2\theta + \hat{\mathbf{q}})$ 方向成分にのみ敏感であることを示している。このため散乱角が小さいときには磁化の X 線進行方

向への射影成分が磁気散乱に寄与する。また磁気散乱差強度は磁気散乱振幅に1次で比例していることが判る。

3.3 X線磁気円二色性

X線磁気円二色性 (XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism) とはターゲット元素の吸収端近傍でX線吸収が入射する円偏光のヘリシティによって異なる現象である。このヘリシティによる吸収係数の相違はX線共鳴磁気散乱とほぼ同様の理由による。これは次式のように吸収係数は散乱因子(3.49)の虚数項にのみ依存しているためである。

$$\mu = \frac{4\pi n_0 r_e}{q} \text{Im}[f] \quad (3.57)$$

ここで n_0 は単位体積あたりの原子数。左右円偏光を入射したときの吸収係数をそれぞれ μ^- , μ^+ とすると

$$\mu^+ = \frac{4\pi n_0 r_e}{q} (f_c'' - f_m'' \cos \varphi) \quad (3.58)$$

$$\mu^- = \frac{4\pi n_0 r_e}{q} (f_c'' + f_m'' \cos \varphi) \quad (3.59)$$

と表される。ここで φ はX線と磁気モーメントの成す角。これら2つの差をとると

$$\mu^+ - \mu^- = \frac{4\pi n_0 r_e}{q} (-2f_m'' \cos \varphi) \quad (3.60)$$

となる。これよりXMCD測定によって一次共鳴項の虚数項 f_m'' を得られることが判る。

一方2つの吸収係数の平均値は

$$\frac{\mu^+ + \mu^-}{2} = \frac{4\pi n_0 r_e}{q} f_c'' \quad (3.61)$$

となり、電荷項の虚数項 f_c'' が得られる。これら虚数項 f_c'' , f_m'' をKramers-Kronig変換することでそれぞれの実数項 f_c' , f_m' が導かれる。

第 4 章 磁気散乱実験 方法

4.1 試料

実験に用いた Co/Cu 多層膜試料はマグネトロンスパッタリング装置によって作成された。作成時のベース真空度は 10^{-6} Pa, Ar 分圧は 4.0×10^{-1} Pa であった。試料の構造 (設計値) を表 4.1 に示す。

表 4.1 試料構造 (設計値)

BL 39 XU	Co/Cu 66	Cu(1.9)/[Co(1.2)/Cu(1.94)]50/Ta(5.0)/Si-Sub
4-ID-D	Co/Cu 123	Cu(1.9)/[Co(1.2)/Cu(3.0)]50/Ta(5.0)/Si-Sub

図 4.1 に X 線鏡面反射率測定の実験結果とシミュレーション結果を示す。

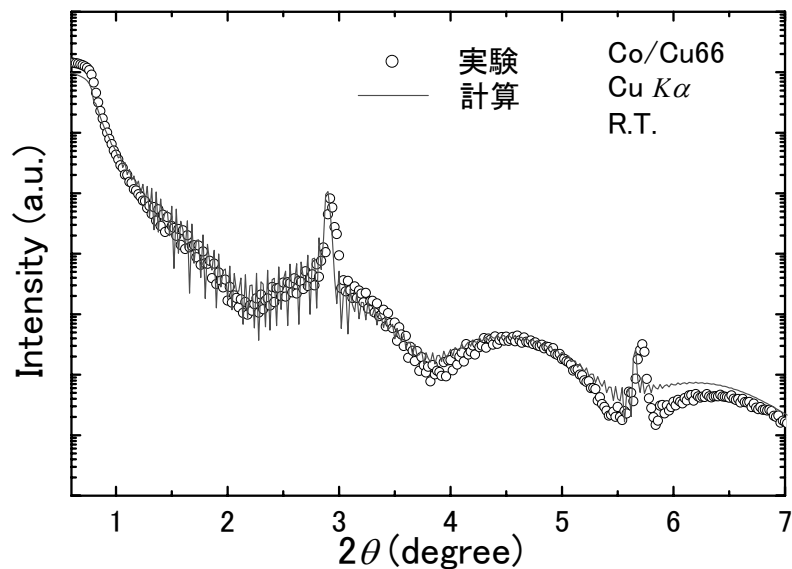


図 4.1 Co/Cu 66 の X 線鏡面反射率プロファイル

シミュレーションから決定した構造を以下に示す。

表 4.2 磁気散乱測定条件

CoCu66 (nm)	
$\sigma(\text{air/Cu cap})$	1.083±0050
$t(\text{Cu cap})$	1.765±0.180
$\sigma(\text{Cu/Co})$	0.526±0.019
$t(\text{Co})$	1.223±0.039
$\sigma(\text{Co/Cu})$	0.545±0.022
$t(\text{Cu})$	1.940±0.033
$\sigma(\text{Cu/Ta})$	0.359±0.021
$t(\text{Ta})$	4.840±0.052
$\sigma(\text{Ta/Si})$	0.252±0.006

Co/Cu 磁性多層膜は非磁性 Cu 層の厚さの関数としてその磁気抵抗比 (MR 比) が振動する[19]。この試料の MR 比は振動の第二ピーク付近に当たる。

4.2 X 線磁気散乱実験配置

磁気散乱実験は SPring-8 のビームライン BL39XU および Advanced Photon Source のビームライン 4-ID-D において行った。実験配置は図 2.1 に示した。BL-39XU では挿入光源であるアンジュレーターからの水平面内に偏光した直線偏光を Si(111)の 2 結晶モノクロメータにより単色化している。単色化した直線偏光はダイヤモンド位相子によって左右円偏光に変換される。この円偏光は下流のミラーによって高調波を取り除かれたのち実験ハッチに導入される。

4.3 X 線共鳴磁気散乱の測定方法

実験に用いた X 線のエネルギーは SPring-8 では CoK 吸収端 7720 eV, APS では CoK 吸収端 7723 eV および CuK 吸収端 8992 eV である。SPring-8 では APD 測定系をテストするため、ダイヤモンド移相子の振動周波数 (1 Hz, 10 Hz, 0.1 Hz) と APD に入射する散乱強度を変化させて測定した。APD 検出器への入射強度は Al 吸収板によって変化させた。APD 測定系のテストは CoK 端 (7720 eV) において 1 次ブラッグピーク周り ($2\theta = 2.9^\circ \sim 3.2^\circ$) についてダイヤモンド位相子を回転振動させるヘリシティフリップデジタルロックイン法で行った。これと同じ測定を、印加磁場 (多層膜の飽和磁場) を反転させて行った。表 4.3 に測定時のアテネーター (Al フォイル) の枚数

およびダイヤモンド位相子の周波数、印加磁場の条件を示す。

表 4.3 磁気散乱測定条件

Scan No.	印加磁場	Al (12 μm)	位相子周波数
1	-1000 Oe	無し	1 Hz (同期)
2	+1000 Oe	//	
3	-1000 Oe	10 枚	
4	+1000 Oe	//	
5	+1000 Oe	4 枚	
6	-1000 Oe	//	
7	-1000 Oe	12 枚	
8	+1000 Oe	//	
9	+1000 Oe	16 枚	
10	-1000 Oe	//	
11	-1000 Oe	20 枚	
12	+1000 Oe	//	
13	+1000 Oe	12 枚	10 Hz (同期)
14	-1000 Oe	//	
15	-1000 Oe	12 枚	0.1 Hz (非同期)
16	+1000 Oe	//	

ここで周波数 0.1 Hz の実験は非同期式である。ファンクション・ジェネレータ波形の第 1 サイクルの立ち上がりで同期を取るのみで、以後タイミングは計算機のクロックで計時して取るためカウンターと位相子は同期していない。

次にダイヤモンド移相子の 3 つの周波数と gate delay 時間、gate open 時間、測定サイクル数の関係を表 4.4 に示す。

表 4.4 周波数別測定条件

モード (Hz)	gate delay (ms)	gate open (ms)	サイクル数 N	1 点の計数時間 (s)
0.1	0	5000	2	10
1	10	389.9	30	11.697
10	10	29.9	300	8.9703

ここで1点の計数時間：+、-光各々の計数時間（=gate open×N）である。ダイヤモンド移相子の振動周波数が1 Hz、測定サイクル数が30回の場合は1測定点当たり30秒の測定になる。しかしこの場合 gate delay=10 ms, gate open=390 ms であるため、実際には片側ヘリシティについて1測定点で約12秒の測定となる。周波数が0.1 Hz, 10 Hz の場合にも正味の測定時間が近くなるように測定サイクル数を設定した。

第 5 章 磁気散乱実験 結果

5.1 測定データ

以下に、ダイヤモンド移相子の周波数 1 Hz (6 個)、10Hz (1 個)、0.1Hz (1 個) の順で実験結果を示す。

① $I^+(2\theta)$, $I^-(2\theta)$

$I^\pm(2\theta)$: \pm offset に対応する APD カウント

$I_M^\pm(2\theta)$: \pm offset に対応するモニター (イオンチェンバ) カウント

またグラフで使用しているシンボルはそれぞれ以下の通り。

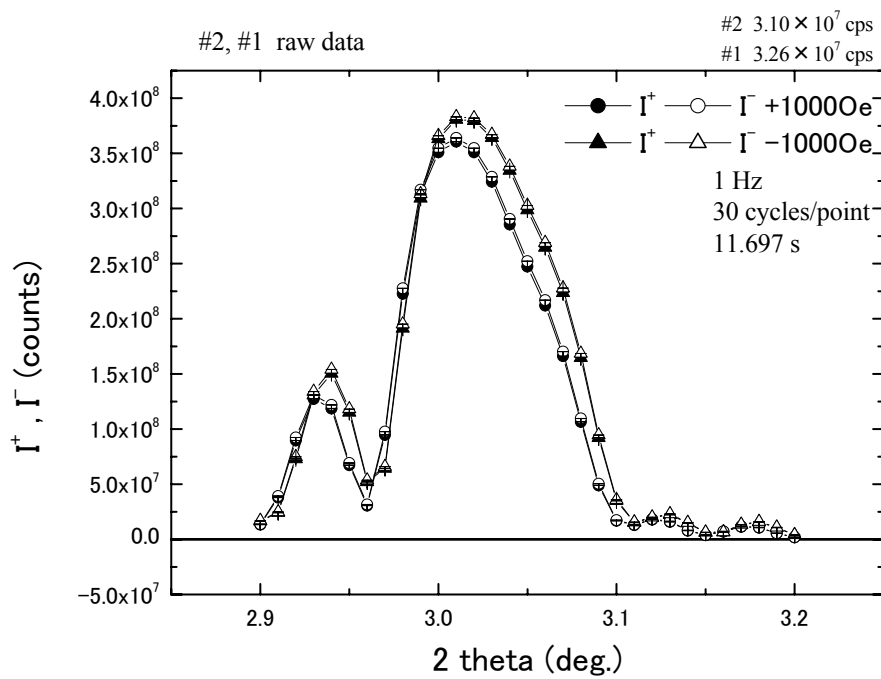
● : 印加磁場 +1000 Oe +offset 入射における散乱強度 $I^+(2\theta)$

○ : 印加磁場 +1000 Oe -offset 入射における散乱強度 $I^-(2\theta)$

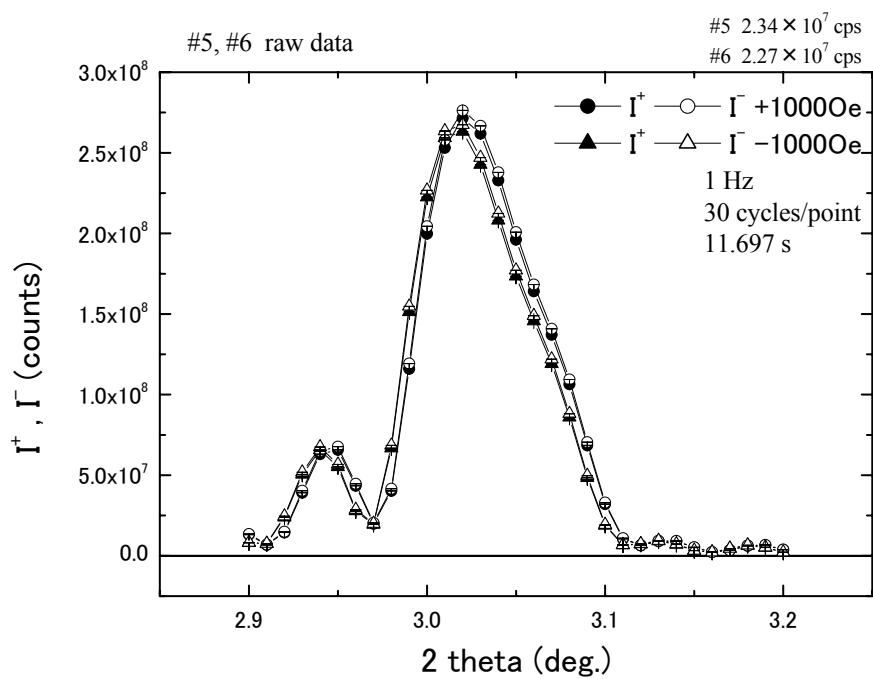
▲ : 印加磁場 -1000 Oe +offset 入射における散乱強度 $I^+(2\theta)$

△ : 印加磁場 -1000 Oe -offset 入射における散乱強度 $I^-(2\theta)$

以下に示す図で、測定時間が同じでも +磁場と -磁場で強度が異なるのは、X 線の入射強度が変化しているためである。また磁場変化によってピーク位置が異なるデータもあるが、これはゴニオメータに対して比較的重量の重い電磁石を搭載しているためアライメントにズレが生ずるためである。

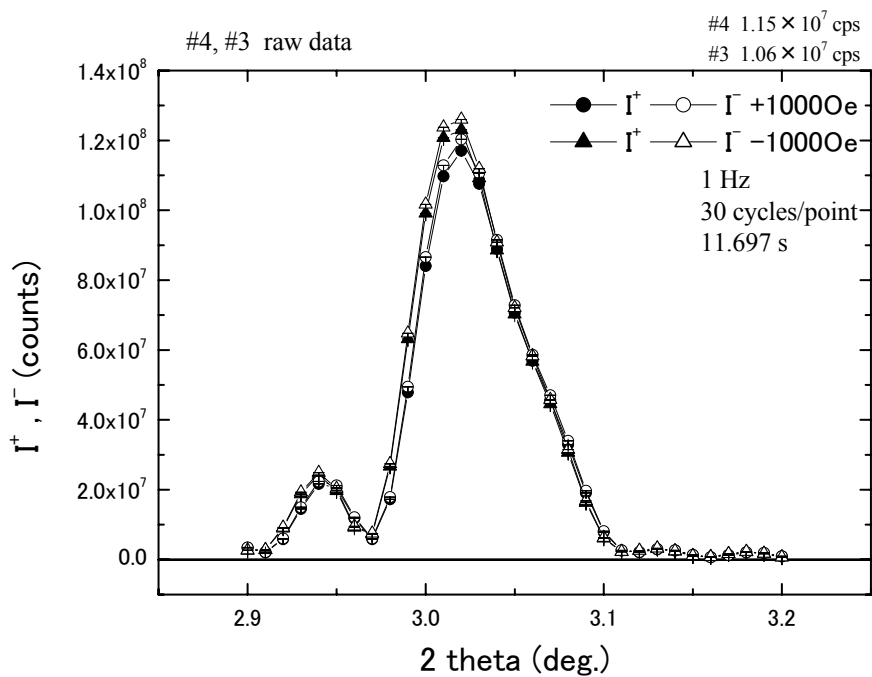


Scan No.1,2 吸収板Al 0 μm
移相子周波数 1 Hz

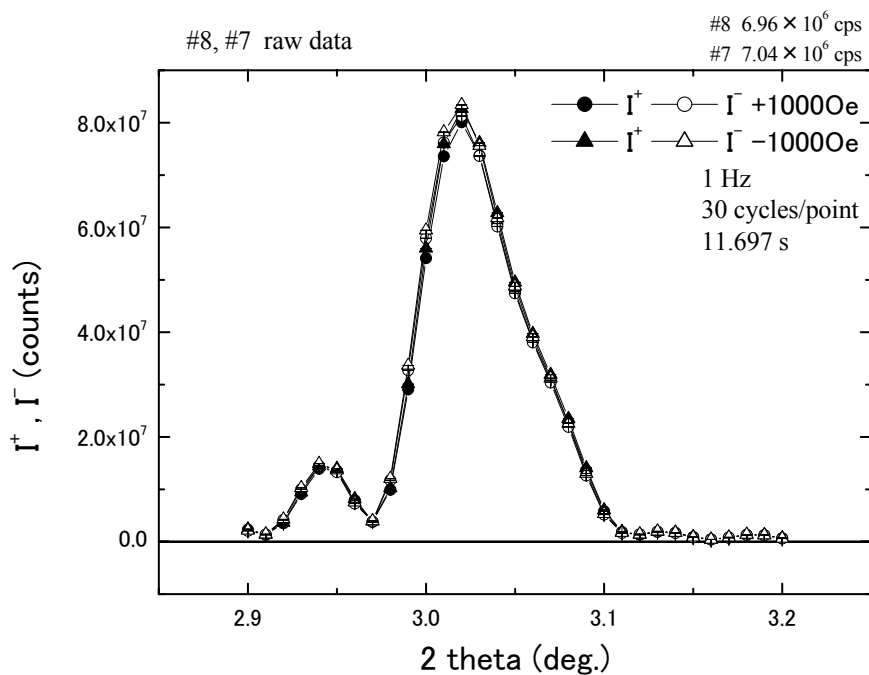


Scan No.5,6 吸収板Al 56 μm
移相子周波数 1 Hz

図 5.1 I^+, I^- データ

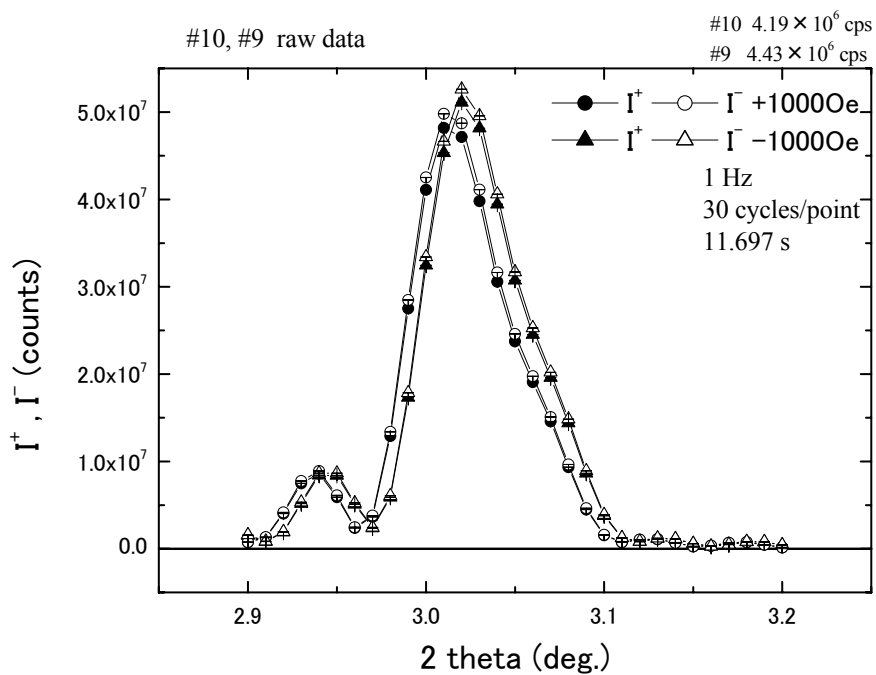


Scan No.3,4 吸収板Al 120 μm
移相子周波数 1 Hz

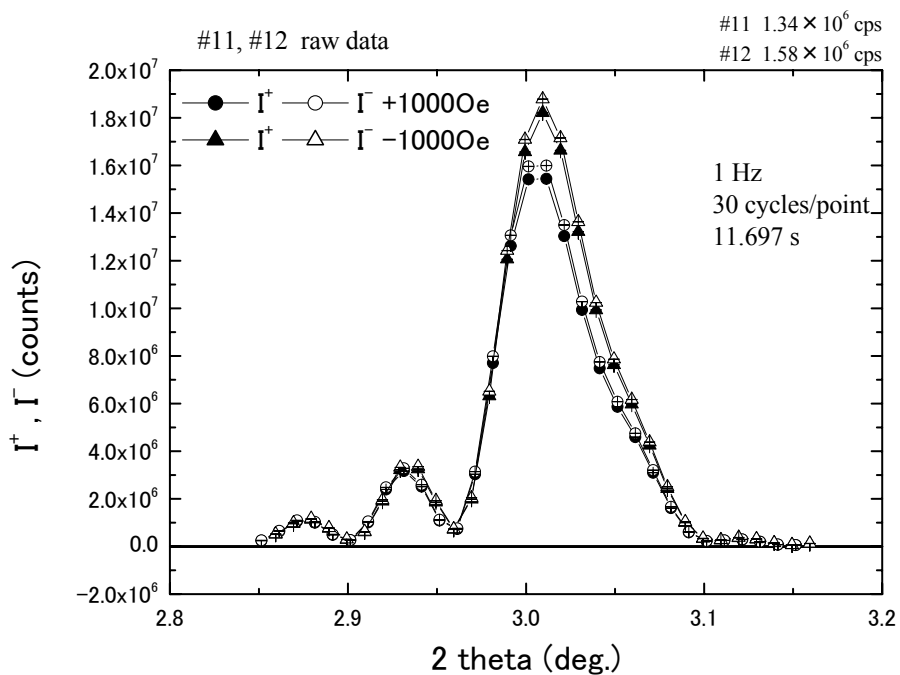


Scan No.7,8 吸収板Al 144 μm
移相子周波数 1 Hz

図 5.1 Γ^+ , Γ^- データ

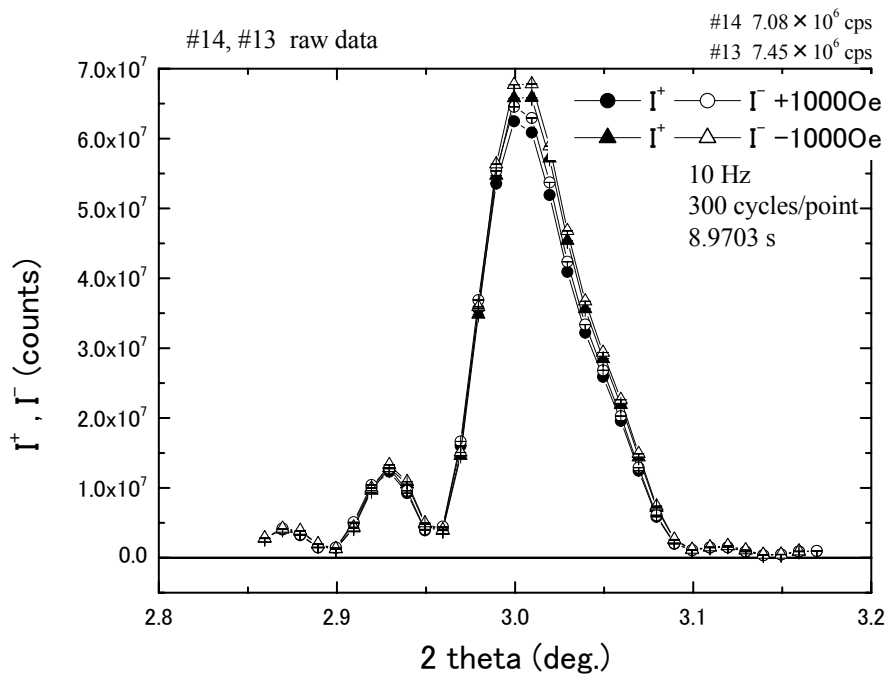


Scan No.9,10 吸収板Al 192 μm
移相子周波数 1 Hz

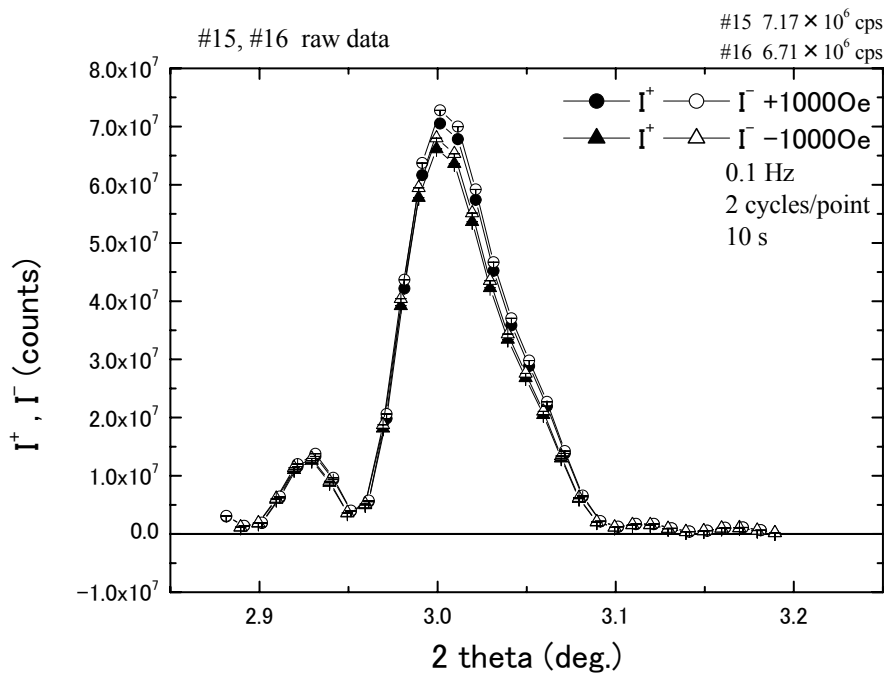


Scan No.11,12 吸収板Al 240 μm
移相子周波数 1 Hz

図 5.1 Γ^+, Γ^- データ



Scan No.13,14 吸収板Al 144 μm
移相子周波数 10 Hz



Scan No.15,16 吸収板Al 144 μm
移相子周波数 0.1 Hz

図 5.1 I^+, I^- データ

表 5.1 に各周波数の測定のピーク位置における I^+ , I^- の計数率を示す。印加磁場は 1000 Oe である。

表 5.1 測定データのピーク計数率

測定データ (I^+) ピーク計数率 (10^6 cps)								
モード(Hz)		Al (μm)	240	192	144	120	56	0
		0.1	+磁場				7.05	
-磁場					6.62			
1	+磁場		1.32	4.12	6.85	10.0	23.2	30.8
	-磁場		1.56	4.37	6.95	10.5	22.5	32.6
10	+磁場				6.96			
	-磁場				7.34			

測定データ (I^-) ピーク計数率 (10^6 cps)								
モード(Hz)		Al (μm)	240	192	144	120	56	0
		0.1	+磁場				7.28	
-磁場					6.80			
1	+磁場		1.37	4.26	7.07	10.3	23.6	31.1
	-磁場		1.61	4.50	7.13	10.8	22.9	32.8
10	+磁場				7.19			
	-磁場				7.56			

同じ測定について $I^+ < I^-$ となっているのはダイヤモンド移相子を透過した時点でモニターカウント (円偏光 X 線強度) $I_M^\pm(2\theta)$ が $I_M^+(2\theta) < I_M^-(2\theta)$ となっているためである。また測定データの誤差は

$$\delta I^\pm(2\theta) = \sqrt{I^\pm(2\theta)} \quad (5.1)$$

となる。図 5.1 にはこの誤差をエラーバーとして示してあるが、シンボルの大きさより小さいので見えない。

5.2 差/和データ $[I^+ - I^-] / [I^+ + I^-]_{B.P}$

第3章の(3.56)で示したように、磁気散乱（正確には電荷—磁気干渉散乱）に相当する共鳴項はヘリシティを反転させた2つの測定の差をとることにより取り出すことができる。以下、図5.2にこのヘリシティ反転した2つの強度の差をとったデータを示す。ただしグラフでは+オフセットデータと-オフセットデータの差強度をそれらのブラッグピークにおける和強度で規格化した差/和 $[I^+ - I^-] / [I^+ + I^-]_{B.P}$ となっている。ここで、 I^\pm はAPD検出器のカウントをイオンチェンバによるモニターカウントで規格化した

$$I^\pm = \frac{I^\pm(2\theta)}{I_M^\pm(2\theta)} \quad (5.2)$$

であり、差/和は

$$\frac{I^+ - I^-}{[I^+ + I^-]_{B.P.}} = \frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} - \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \bigg/ \left[\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} + \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \right]_{B.P.} \quad (5.3)$$

と書き表される。

以下、測定データに演算を加えるために生じる誤差の伝播を考える。まず、(5.2)式の分母にあたるモニターカウントで規格化した和強度 $\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} + \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)}$ の誤差を表す式を求める。

$$y_{sum}(2\theta) = \frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} + \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \quad (5.4)$$

とするとその誤差は

$$[\delta y_{sum}(2\theta)]^2 = \left[\frac{\partial y_{sum}(2\theta)}{\partial I^+(2\theta)} \right]^2 [\delta I^+(2\theta)]^2 + \left[\frac{\partial y_{sum}(2\theta)}{\partial I^-(2\theta)} \right]^2 [\delta I^-(2\theta)]^2 \quad (5.5)$$

となる。ここで

$$\frac{\partial y_{sum}(2\theta)}{\partial I^+(2\theta)} = \frac{1}{I_M^+(2\theta)}, \quad \frac{\partial y_{sum}(2\theta)}{\partial I^-(2\theta)} = \frac{1}{I_M^-(2\theta)}, \quad \delta I^\pm(2\theta) = \sqrt{I^\pm(2\theta)}$$

であるから

$$[\delta y_{\text{sum}}(2\theta)]^2 = \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 I^+(2\theta) + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 I^-(2\theta) \quad (5.7)$$

となる。

次に、和シグナルの最大値（ブラッグピーク強度）で規格化した差シグナル

$$\hat{y}_{\text{dif}}(2\theta) = \frac{1}{y_{\text{sum}}(\text{max})} \left[\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} - \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \right] \quad (5.8)$$

の誤差を表す式を求める。 $y_{\text{sum}}(\text{max})$ 中にも I^\pm が含まれることを考慮すると、

$$\begin{aligned} [\delta \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)]^2 &= \left[\frac{\partial \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)}{\partial I^+(2\theta)} \right]^2 [\delta I^+(2\theta)]^2 + \left[\frac{\partial \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)}{\partial I^-(2\theta)} \right]^2 [\delta I^-(2\theta)]^2 \\ &\quad + \left[\frac{\partial \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)}{\partial y_{\text{sum}}(\text{max})} \right]^2 [y_{\text{sum}}(\text{max})]^2 \end{aligned} \quad (5.9)$$

である。

$$\frac{\partial \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)}{\partial I^+(2\theta)} = \frac{1}{y_{\text{sum}}(\text{max})} \frac{1}{I_M^+(2\theta)}, \quad \frac{\partial \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)}{\partial I^-(2\theta)} = -\frac{1}{y_{\text{sum}}(\text{max})} \frac{1}{I_M^-(2\theta)},$$

$$\frac{\partial \hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)}{\partial y_{\text{sum}}(\text{max})} = -\frac{1}{y_{\text{sum}}(\text{max})^2} \left[\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} - \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \right]$$

ここで $\delta I^+(2\theta) \equiv \alpha$, $\delta I^-(2\theta) \equiv \beta$ とおく。

したがって

$$\begin{aligned}
[\hat{y}_{dif}(2\theta)]^2 &= \left[\frac{1}{y_{sum}(\max)} \frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \alpha^2 + \left[\frac{1}{y_{sum}(\max)} \frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \beta^2 \\
&+ \left\{ \frac{1}{y_{sum}^2(\max)} \left[\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} - \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \right] \right\}^2 \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(\max)} \right]^2 I^+(\max) + \left[\frac{1}{I_M^-(\max)} \right]^2 I^-(\max) \right\} \\
&= \frac{1}{y_{sum}^2(\max)} \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \alpha^2 + \left[\frac{1}{I_M^+(\max)} \right]^2 \frac{\left[\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} - \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \right]^2}{y_{sum}^2(\max)} I^+(\max) \right. \\
&+ \left. \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \beta^2 + \left[\frac{1}{I_M^-(\max)} \right]^2 \frac{\left[\frac{I^+(2\theta)}{I_M^+(2\theta)} - \frac{I^-(2\theta)}{I_M^-(2\theta)} \right]^2}{y_{sum}^2(\max)} I^-(\max) \right\} \\
&\approx \frac{1}{y_{sum}^2(\max)} \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 [\alpha^2 + \hat{y}_{dif}^2(2\theta) I^+(\max)] + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 [\beta^2 + \hat{y}_{dif}^2(2\theta) I^-(\max)] \right\}
\end{aligned} \tag{5.10}$$

モニターカウントは角度に依存しないため

$$I_M^\pm(2\theta) \approx I_M^\pm(\max)$$

と近似できる。

ピーク付近の角度 ($2\theta \approx \max$) で考えると

$$\begin{aligned}
I^\pm(2\theta) + \hat{y}_{dif}^2(2\theta) I^\pm(\max) &\approx I^\pm(\max) + \hat{y}_{dif}^2(\max) I^\pm(\max) \\
&= I^\pm(\max) [1 + \hat{y}_{dif}^2(\max)] \\
&\approx I^\pm(\max)
\end{aligned}$$

である。一般に第二項はピーク以外のほとんどの領域においても第一項に比べて無視できる程度であると考えられる。したがって

$$I^\pm(2\theta) + \hat{y}_{dif}^2(2\theta) I^\pm(\max) \approx I^\pm(2\theta) \tag{5.11}$$

と近似する。

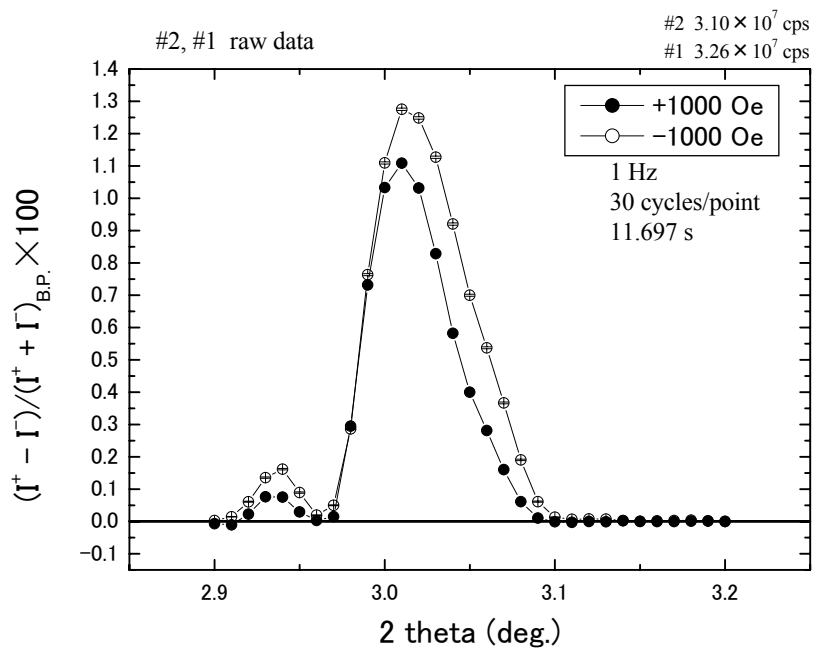
最終的に次式を得る。

$$[\hat{\sigma}_{\text{dif}}(2\theta)]^2 = \frac{1}{y_{\text{sum}}^2(\text{max})} \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \alpha^2 + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \beta^2 \right\}$$

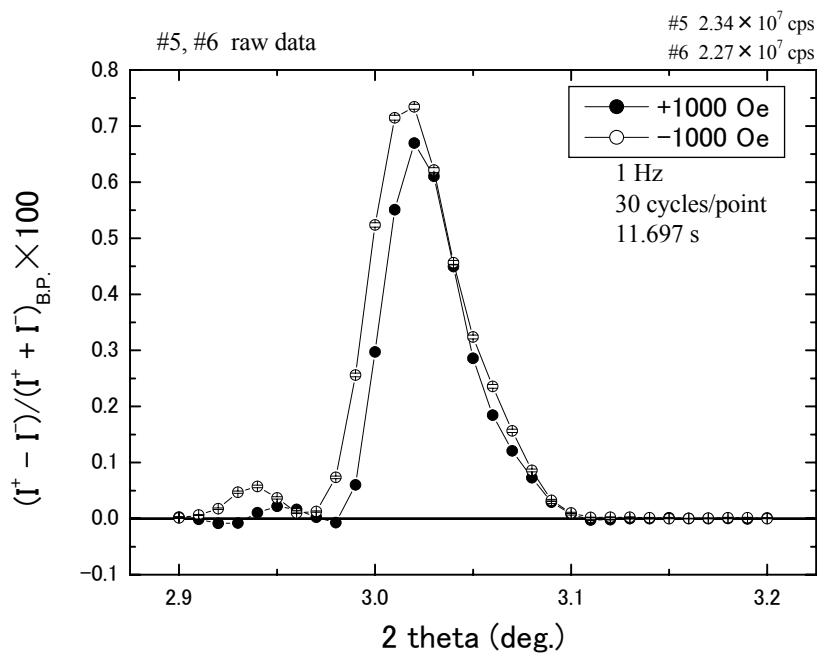
よって

$$[\hat{\sigma}_{\text{dif}}(2\theta)]^2 = \frac{1}{y_{\text{sum}}^2(\text{max})} \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 I^+(2\theta) + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 I^-(2\theta) \right\} \quad (5.12)$$

この式は、 $\hat{y}_{\text{dif}}(2\theta)$ の誤差を計算する際に、分母に由来する誤差を無視できることを示している。

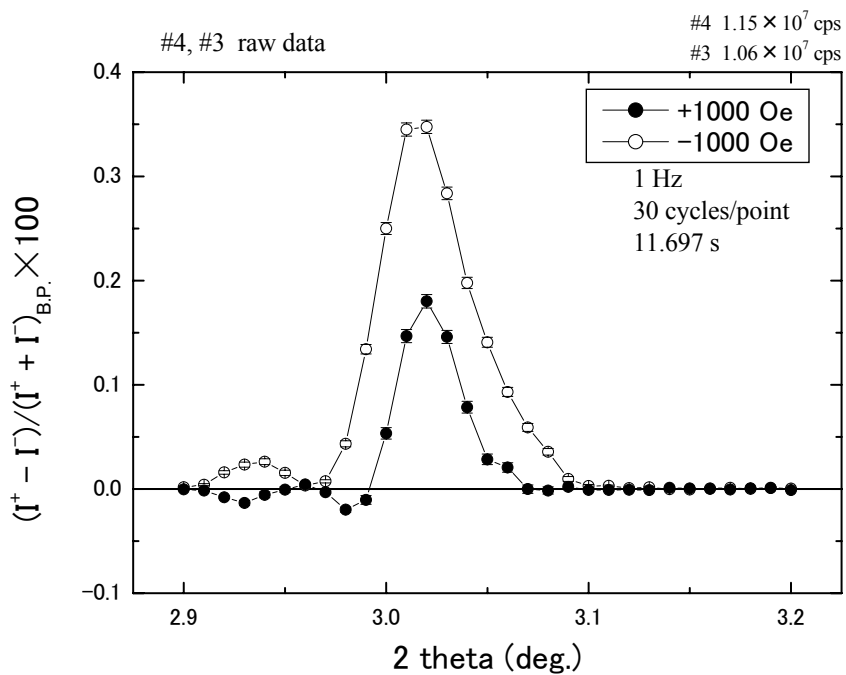


Scan No.1,2 吸收板Al 0 μm
移相子周波数 1 Hz

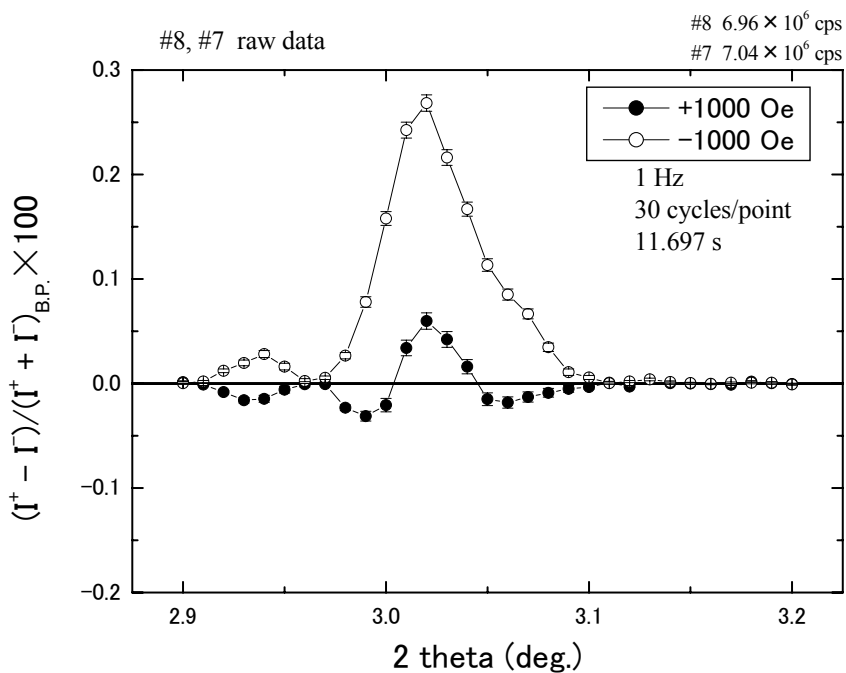


Scan No.5,6 吸收板Al 56 μm
移相子周波数 1 Hz

図 5.2 $[I^+ - I^-]/[I^+ + I^-]_{BP}$

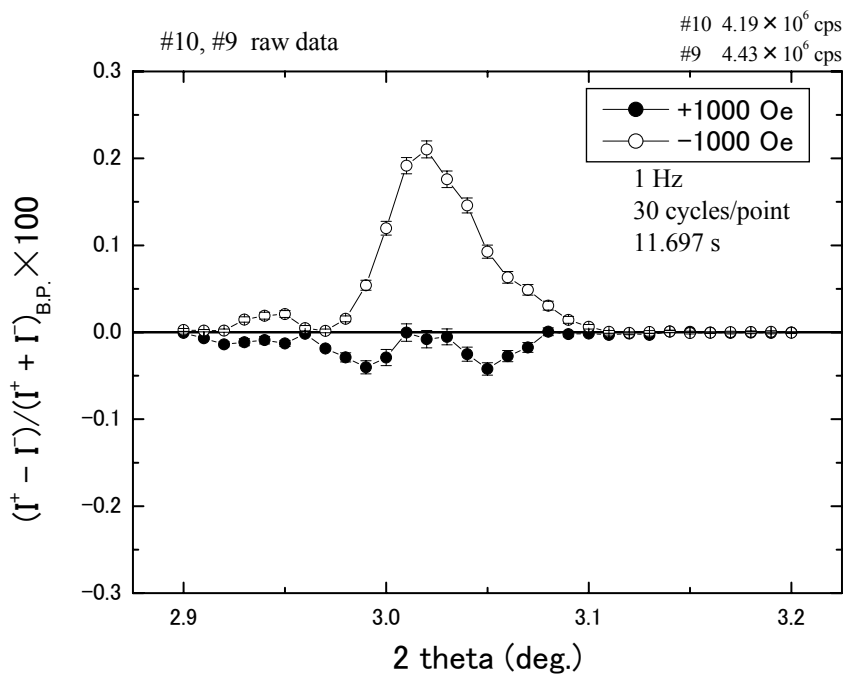


Scan No.3,4 吸收板Al 120 μm
移相子周波数 1 Hz

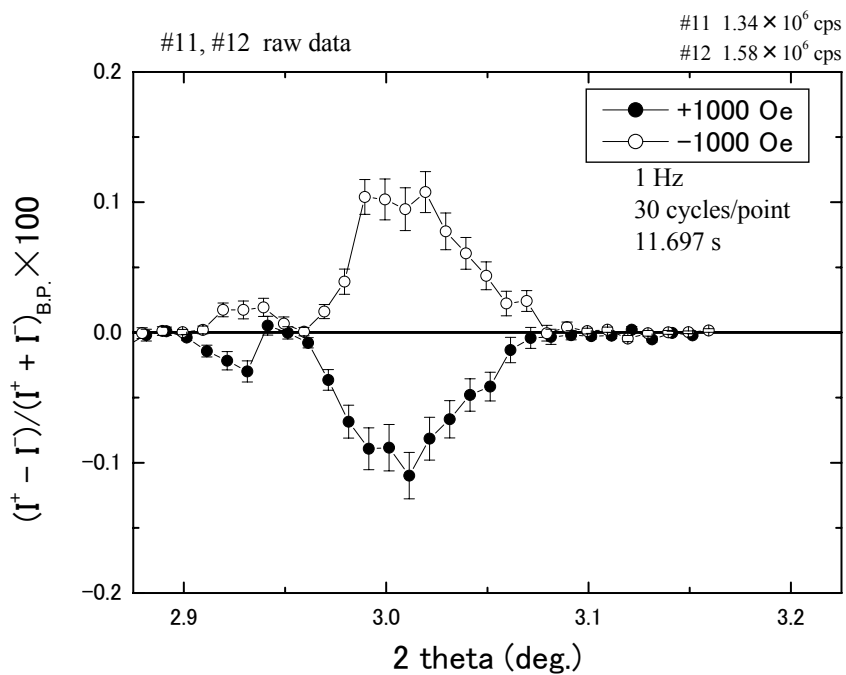


Scan No.7,8 吸收板Al 144 μm
移相子周波数 1 Hz

図 5.2 $[I^+ - I^-]/[I^+ + I^-]_{BP}$

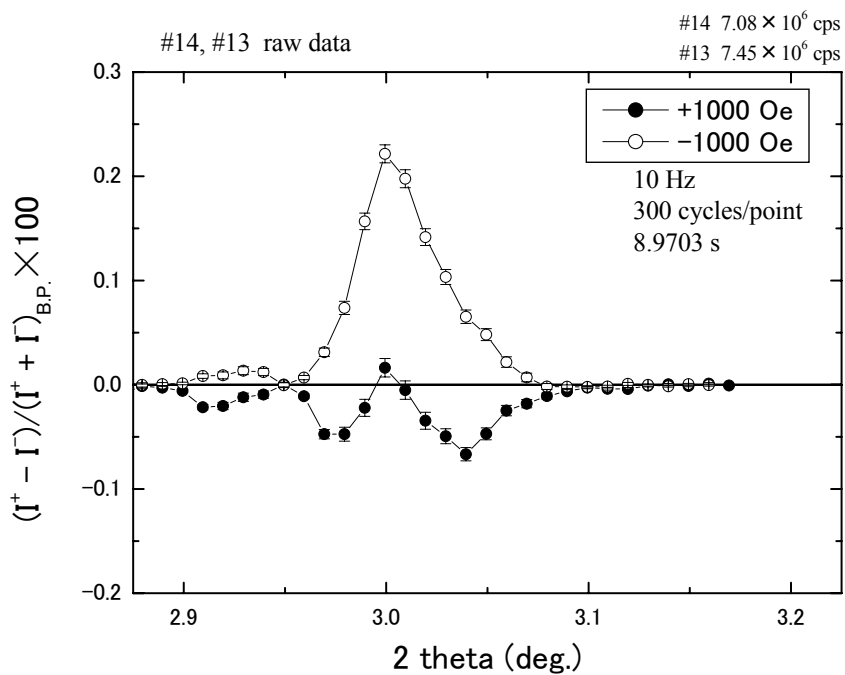


Scan No.9,10 吸收板Al 192 μm
移相子周波数 1 Hz

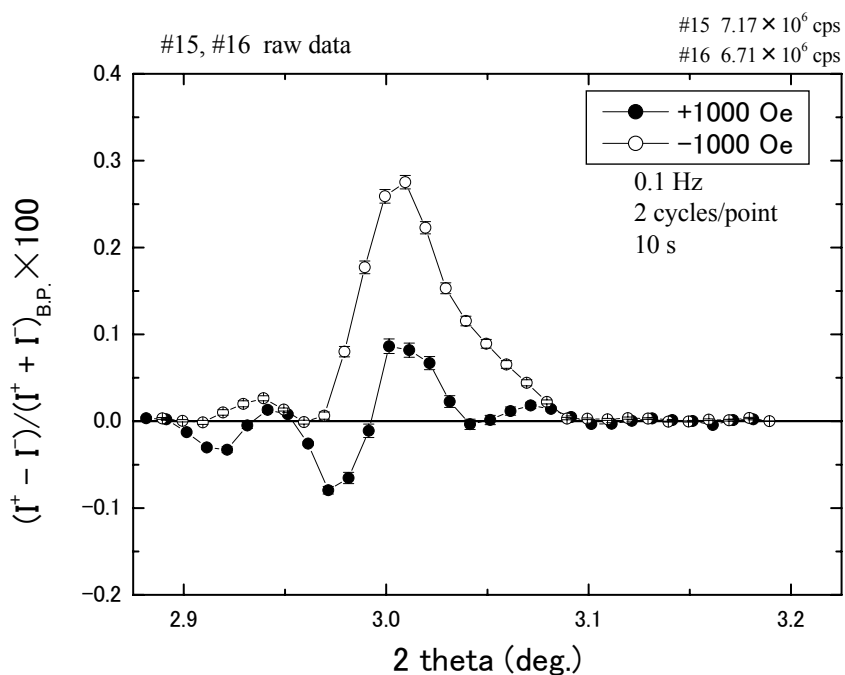


Scan No.11,12 吸收板Al 240 μm
移相子周波数 1 Hz

図 5.2 $[I^+ - I^-]/[I^+ + I^-]_{BP}$



Scan No.13,14 吸收板Al 144 μm
移相子周波数 10 Hz



Scan No.15,16 吸收板Al 144 μm
移相子周波数 0.1 Hz

図 5.2 $[I^+ - I^-]/[I^+ + I^-]_{BP}$

第 6 章 磁気散乱実験 解析

6.1 放射光の時間構造

第 3 章で述べたように、磁気散乱の共鳴項による散乱強度は、印加磁場を固定した上でヘリシティを反転した 2 つの測定、あるいはヘリシティを固定した上で印加磁場を反転した 2 つの測定の差をとることにより実験データから取り出すことができる。つまり試料の磁気モーメントの方向（印加磁場）と入射 X 線のヘリシティの関係のみに因るため、一定の印加磁場中 (± 1000 Oe) でヘリシティの符号を交互に反転させた場合、その共鳴項に依存した散乱強度は正の印加磁場の結果と負の印加磁場の結果ではその符号のみが異なる。

しかし測定データから計算した磁気散乱強度 ($[I^+ - I^-] / [I^+ + I^-]_{B.P}$) (図 5.2) を見ると、スキャン No.11, 12 (位相子周波数 1 Hz, 吸収板 Al 240 μm) のみが印加磁場の反転に対してピークの符号が反転している。負の印加磁場に対する磁気散乱ピークは全て正であり、正の印加磁場に対するそれは条件により符号や形状が異なっている。図 6.1 に位相子周波数 1 Hz、正の印加磁場の場合の磁気散乱ピークを示す。図はこれまで同様、吸収板の薄く入射強度の強い (計数率の高い) データから順に並べてある。また、比較のため負印加磁場中で測定した磁気散乱ピークを灰色の実線で示してある。図 6.1 を見ると、入射強度が一番弱い (f) のみが磁場の反転に伴い磁気散乱ピークも反転している。そこから入射 X 線の強度が強くなるにしたがって磁気散乱ピークは潰れ反転していき、負の印加磁場の磁気散乱ピークと同じ正の符号を持つようになる。この磁場反転におけるプロファイルの非対称性はシンクロトロン放射光の時間構造の影響による。

放射光はバンチ化した電子のベンディングマグネットによる制動や挿入光源による軌道の振動によって放射される。そのため、放射光はバンチの分布 = 時間構造を反映したパルス光である。Spring-8 の場合、蓄積リング (周長 1436 m) にバンチが配置可能なサイトは 2436 箇所あり、隣り合うサイトの時間間隔は 1.966 ns である。実験時の蓄積リングのセベラルバンチ運転モードは 203-7 \times 4 bunch train であった。この時間構造の一部を図 6.2 に示す。このモードでは蓄積リングを等間隔に並んだ 203 個のバケットに分け、その内の 7 箇所から連続した 4 バンチを抜いている。つまり、リング内に 175 個のバンチが存在する。結果、シンクロトロン放射は幅サブ・ナノ秒の光パルスとして平均して 23.6 ns 毎に試料に入射することになる。通常の出検器 (例えば、NaI シンチレーション検出器) は 1 μs 程度の不感時間を持つので、個々の光パルスを識別することはできないが、今回用いた APD 検出系は不感時間が約 3.5 ns であるので、個々の光パルスを識別する。しかし、光パルス幅 < 不感時間であるから、1

光パルスから n 個の光子が APD に入射すると、パルスがパイルアップし、 n 倍の振幅を持つパルスが 1 個生じる。ここで、問題となる不感時間は APD 内の電荷収集時間とアンプの時定数で決まる不感時間であって、SR400 を含めた検出系全体の不感時間 (3.5 ns) ではない。前者は 3.5 ns より短く、2 ns 程度と考えられる。

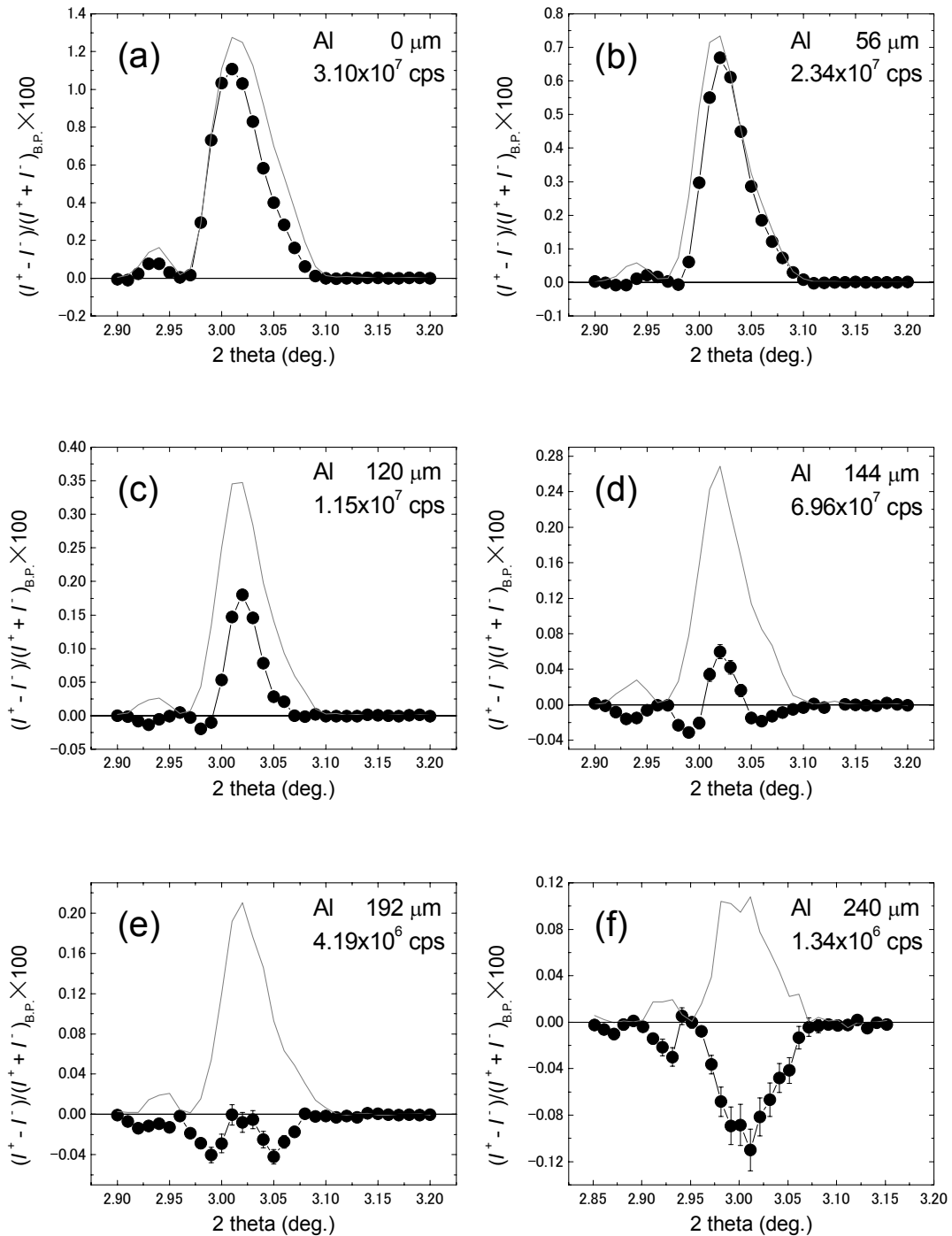


図 6.1 正印加磁場測定での $[I^+ - I^-]/[I^+ + I^-]_{B.P.}$

● : +1000 Oe に対する $[I^+ - I^-]/[I^+ + I^-]_{B.P.}$ 。比較のため -1000 Oe の場合を実線で示している。

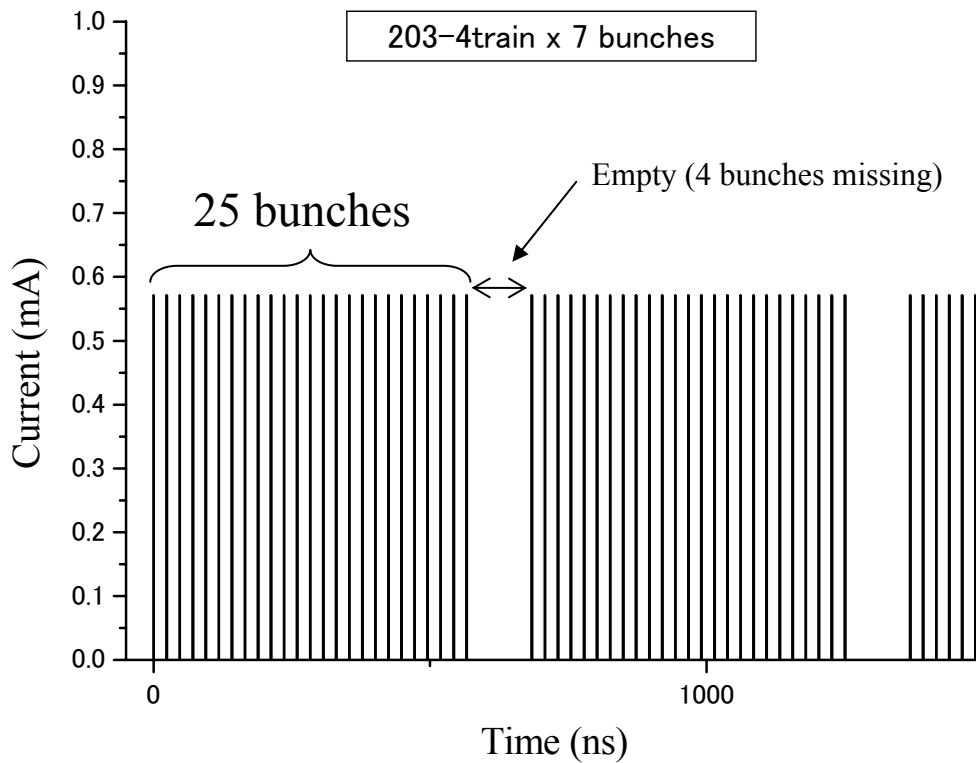


図 6.2 バンチモード 203-7×4 bunch train の時間構造

6.2 数え落とし補正

前述のように、APD 検出器の不感時間と放射光の時間構造の関係からそれぞれのバンチから放射される個々のパルスを分離して測定することは可能であるが、それら 1 つのパルス内に複数の光子が含まれていたとしても APD 検出器は 1 個のパルスとして数えることになる。このときに数え落とした光子数の分を補正する必要がある。

光子数は 1 つのパルス内では連続 X 線と同様に Poisson 分布に従うものと考えられる。その平均光子数を q とすると n 個来る確率は

$$\frac{q^n}{n!} \exp[-q] \quad (6.1)$$

である。 n がどのような数字であっても APD 検出器は 1 個として数えるため、計測される光子数は

$$\begin{aligned}
q' &= q \cdot \exp[-q] + \frac{q^2}{2!} \exp[-q] + \dots + \frac{q^n}{n!} \exp[-q] + \dots = \exp[-q] \left(1 + q + \frac{q^2}{2!} + \dots + \frac{q^n}{n!} + \dots - 1 \right) \\
&= \exp[-q] \{ \exp[q] - 1 \}
\end{aligned}$$

(6.2)

であるから

$$I_{\text{corr}} = -\ln(1 - q') / q' \times I_{\text{obs}} \quad , \quad q' = I_{\text{obs}} / t f_{\text{ring}} \quad (6.3)$$

ここで I_{obs} , I_{corr} はそれぞれ補正前の計数率 (cps) および補正後の計数率 (cps) である。また t は 1 測定点あたりの測定時間であり、 f_{ring} は 1 秒あたりに通過するバンチ数である。モード 203-7×4 bunch train の場合 $f_{\text{ring}} = 3.653 \times 10^7$ bunches/s である。この式を用いて数え落とし補正した各周波数測定のパーク位置における I^+ , I^- の計数率と位相子周波数 1 Hz、正の印加磁場の場合の磁気散乱ピーク (差強度データ) をそれぞれ表 6.1 と図 6.3 に示す。図 6.3 の誤差を求める。式 (6.3) による数え落とし補正を施した和シグナルを $y_{\text{sum}}^{\text{cor}}(2\theta)$ 、差シグナルを $\delta y_{\text{dif}}^{\text{cor}}(2\theta)$ とするとその誤差は

$$\begin{aligned}
[\delta y_{\text{sum}}^{\text{cor}}(2\theta)]^2 &= \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^+(2\theta)} \right)^2 \alpha^2 + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^-(2\theta)} \right)^2 \beta^2 \\
&= \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^+(2\theta)} \right)^2 I^+(2\theta) + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^-(2\theta)} \right)^2 I^-(2\theta)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
[\delta y_{\text{dif}}^{\text{cor}}(2\theta)]^2 &= \frac{1}{[y_{\text{sum}}^{\text{cor}}(\text{max})]^2} \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^+(2\theta)} \right)^2 \alpha^2 + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^-(2\theta)} \right)^2 \beta^2 \right\} \\
&= \frac{1}{[y_{\text{sum}}^{\text{cor}}(\text{max})]^2} \left\{ \left[\frac{1}{I_M^+(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^+(2\theta)} \right)^2 I^+(2\theta) + \left[\frac{1}{I_M^-(2\theta)} \right]^2 \left(\frac{1}{1 - q^-(2\theta)} \right)^2 I^-(2\theta) \right\}
\end{aligned}$$

となる。

表 6.1 補正済みデータのピーク計数率

補正済みデータ (I^+) ピーク計数率 (10^6 cps)							
モード(Hz)		Al (μm)					
		240	192	144	120	56	0
0.1	+磁場			7.83			
	-磁場			7.29			
1	+磁場	1.34	4.37	7.58	11.7	36.9	67.9
	-磁場	1.59	4.65	7.70	12.4	35.0	80.9
10	+磁場			7.72			
	-磁場			8.19			

補正済みデータ (I^-) ピーク計数率 (10^6 cps)							
モード(Hz)		Al (μm)					
		240	192	144	120	56	0
0.1	+磁場			8.12			
	-磁場			7.53			
1	+磁場	1.39	4.53	7.85	12.1	38.0	69.8
	-磁場	1.64	4.80	7.93	12.8	35.9	82.9
10	+磁場			8.01			
	-磁場			8.47			

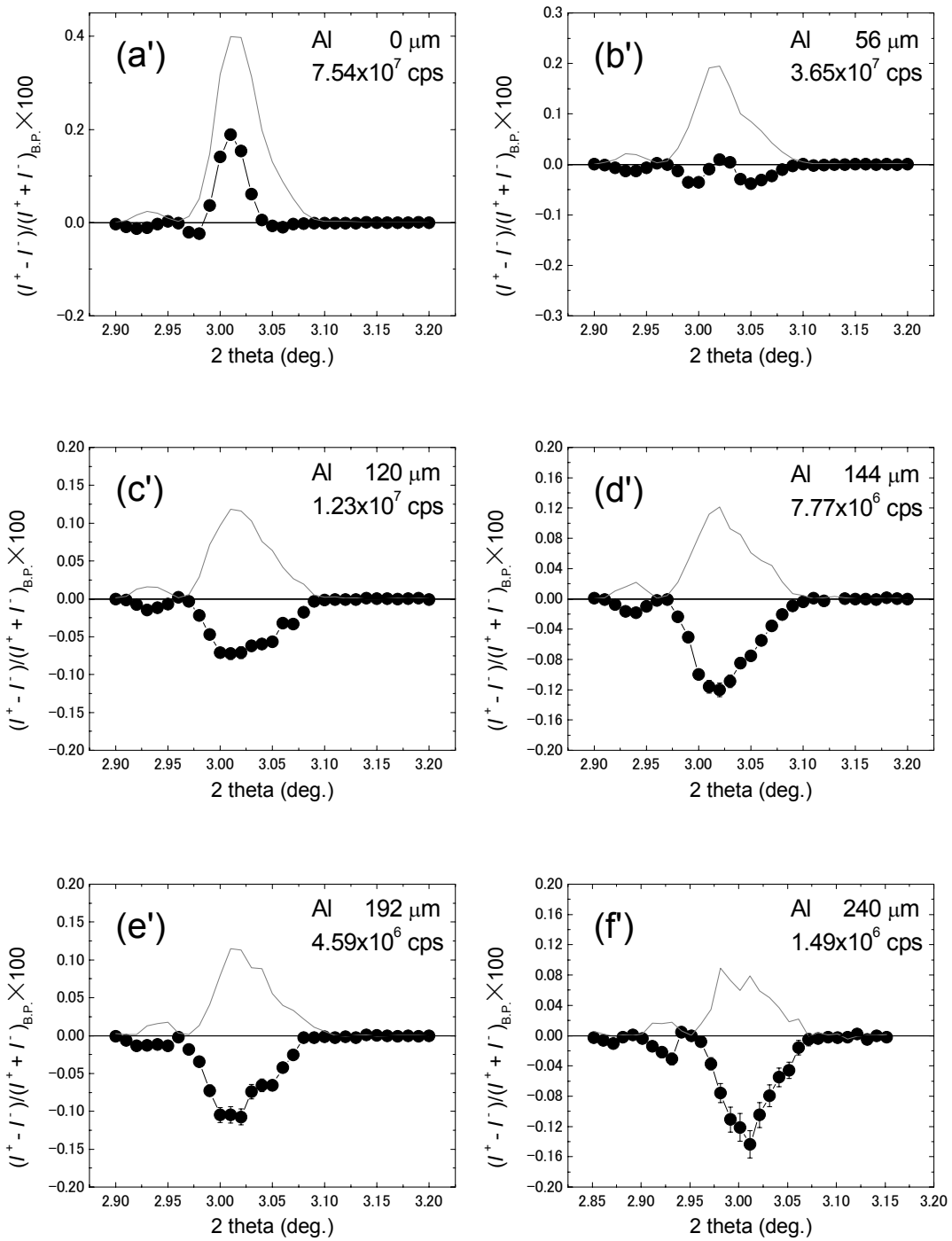


図 6.3 数え落とし補正後の $[I^+ - I^-] / [I^+ + I^-]_{\text{B.P.}}$

数え落とし補正前 (図6.1) と補正後 (図6.3) を比較すると計数率の高い2つの場合 (a) (a'), (b) (b') を除いて、磁場反転によってピークも反転している。またこれら (a), (b) については正の印加磁場の磁気散乱強度が負の印加磁場の磁気散乱強度に比べて補正前にくらべて小さくなっているが磁場を反転したときのピークの符号は変わらない。そこで次に磁場反転した2つの磁気散乱強度の差をとり2で割ったものを比較する。本来ならば磁場反転により磁気散乱強度の符号も反転するためこの値は平均値とも言える。 $(F(+)-F(-))/2 \times 100$ を図6.4に示す。ここで $F(+)$ は正の印加磁場における $F(+)=\frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \Big|_{B.P.}$ である。

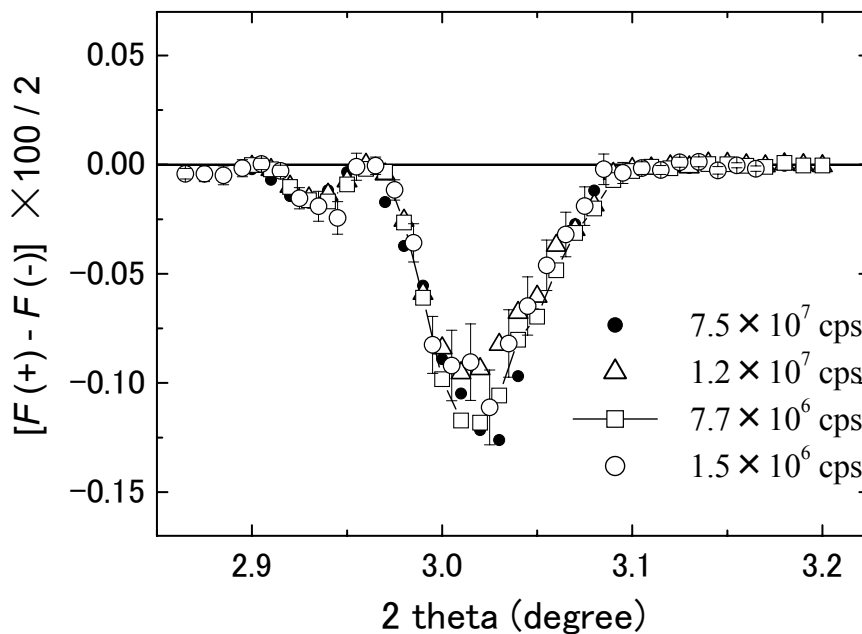


図 6.4 磁場反転した 2 つの差強度の差 $(F(+)-F(-))/2$

図 6.3 では磁場反転した 2 つの磁気散乱ピーク間、特に高計数率の測定において非対称性が残っていた。しかしそれら磁場反転して測定した 2 つの磁気散乱の差をとった結果、図 6.4 ではエラーバーの範囲で一致している。これは差をとることにより磁場に依存しない二色性等によるずれを相殺することが出来たためであると考えられる。

6.3 磁気散乱の移相子振動周波数依存性

次に磁気散乱の移相子振動の周波数依存性を見る。ブラッグピークにおける計数率を 10^6 cps 台後半 (7.7×10^6 cps \sim 8.1×10^6 cps) で固定し、ダイヤモンド移相子の振動周波数を試験的に 10 Hz, 1Hz, 0.1Hz と変化させて測定した 3 つのプロファイル(差強度の差) を図 6.5 に示す。一点あたりの正味の測定時間は表 4.4 に示したように全て 10 秒程度となっている。

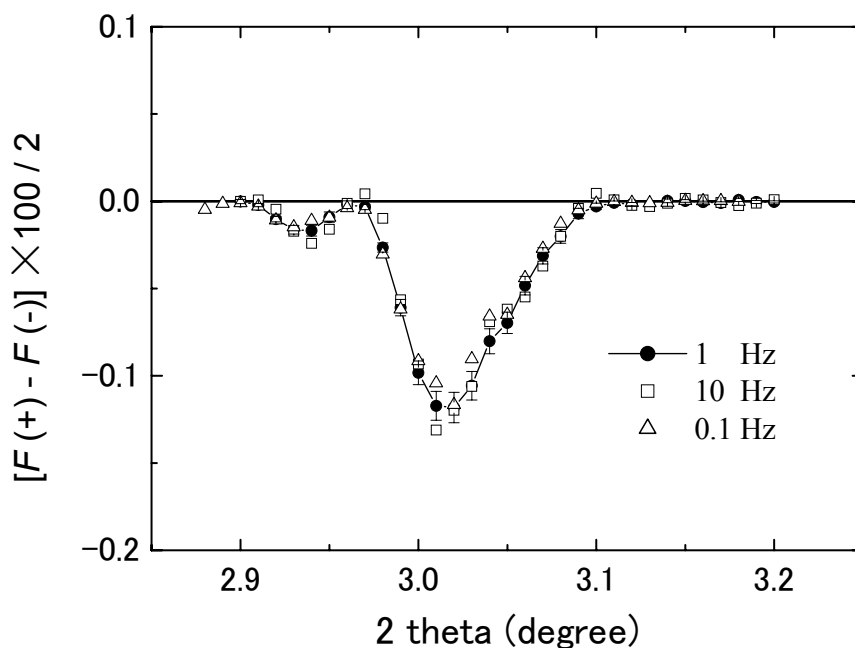


図 6.5 差強度の差 の 移相子周波数依存

ヘリシティフリップに対する同期測定法は固定ヘリシティによる測定と比べると、長周期ノイズを拾いにくいという利点があり、その結果 S/N のよいデータが得られると予測される。しかし図 6.5 を見ると 3 つのプロファイルも誤差を考慮するとよく一致しており、本実験の範囲ではその効果は確認されなかった。今後極めて弱い磁気散乱を長時間かけて測定する場合にその効果が現れる可能性もあるが、一般に周波数が高くなるほど、正味の測定時間 (gate open) が短くなり効率が落ちることを考えると最適な周波数を探すための予備実験を行うメリットは少ないと言える。

6.4 CuK 端における磁気散乱実験 結果

第4章で述べた通り Cu および CoK 端における磁気散乱測定を APS で行った。APS において $H=+540$ Oe (飽和磁場)、ダイヤモンド振動数 1 Hz で測定した Co/Cu123 の 1 次、2 次、3 次電荷散乱ブラッグピークにおける磁気散乱結果を図 6.6 に示す。上図 (a) が CuK 端 (8992 eV) のデータ、下図が CoK 端 (7723 eV) のデータである。図は既に上述の数え落とし補正を施したものである。

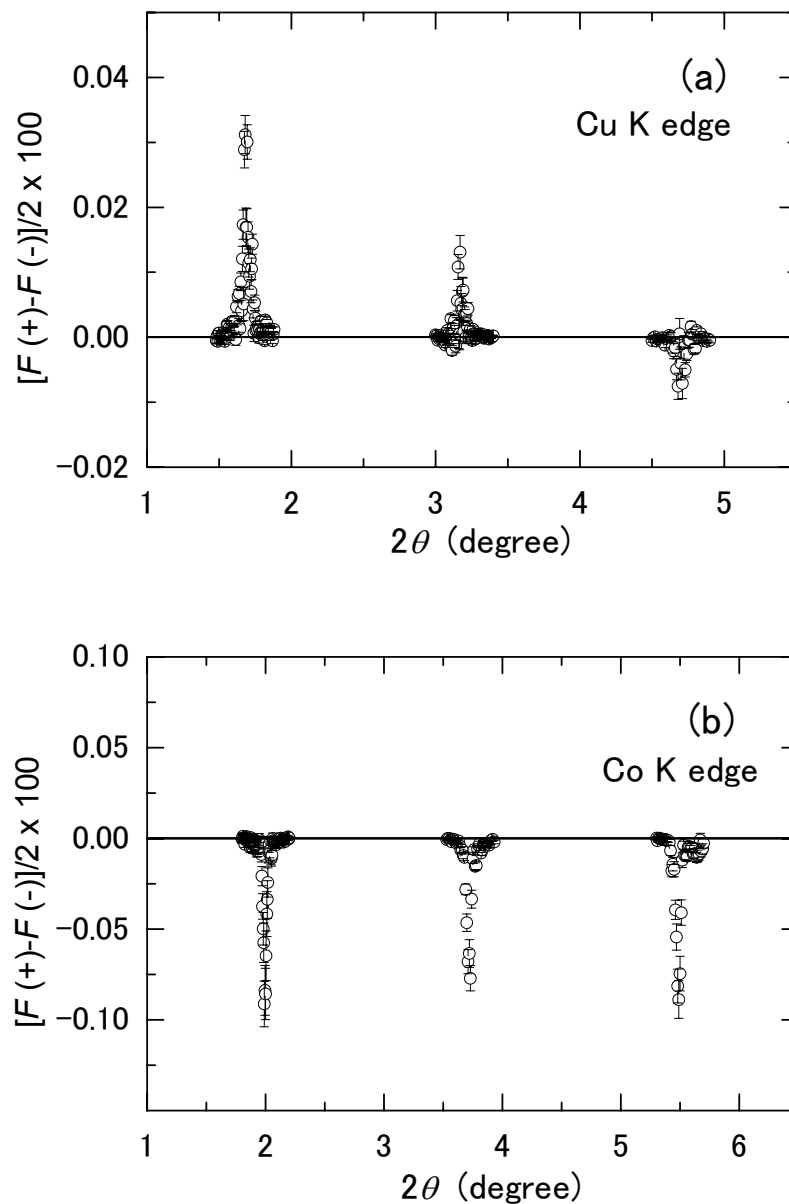


図 6.6 磁気散乱 (差強度の差) CuK 端 (a) と CoK 端 (b)

Co の磁気散乱に比べ 1 桁弱い Cu のピークが、最も弱い 3 次ピークを除いて明瞭に見えている。CoK 端では 1 次、2 次は 80 測定点で 1 点あたり移相子振動 15 サイクル、3 次は 40 測定点で 1 点あたり移相子振動 30 サイクルの測定をそれぞれ 2 回行った。一方、CuK 端では 1 次、2 次は 80 測定点、3 次は 40 測定点で 1 点あたり移相子振動 30 サイクルの測定をそれぞれ 2 回行った。

6.5 APD 検出器の有効性

APD 検出器を用いた磁気散乱測定の結果、より高い計数率では磁場を反転した場合、2 つのプロファイルに非対称性が見られるが、シンクロトロン放射光の時間構造を反映した数え落としを考慮することにより補正が可能であることがわかった。さらにヘリシティ反転法を用いた測定をその印加磁場を反転させて 2 度行い、それら差強度の差をとると、計数率あるいは位相子周波数に依ることなくプロファイルが一致する。このことから差の差をとることで電荷磁気干渉散乱以外の因子の影響を除くことができると考えられる。

また CoK 端における磁気散乱が 30 分程度で測定できることが示された。一方補正後のデータプロファイル (図 6.3(a')) にも非対称性が残るがその原因は判明していない。このことより APD 検出器は 10^6 cps 台の計数率で用いるのが良いと言える。APD 検出器を用いた最適な測定方法をまとめると

1. 周波数 ~ 1 Hz
2. 最大計数率 $< 8 \times 10^6$ cps
3. +磁場と -磁場で測定し、それぞれの差強度の差を取る

の 3 つが挙げられる。

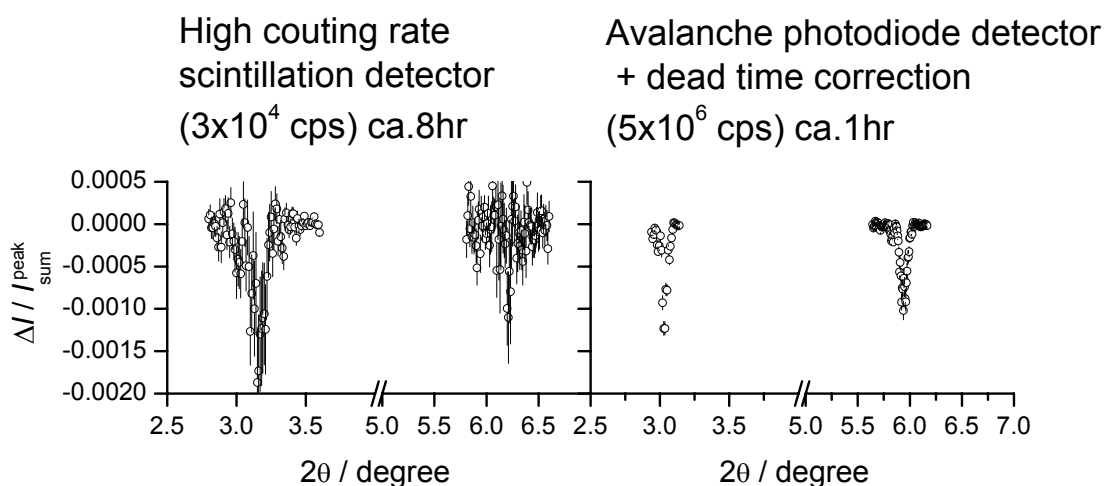


図 6.7 Co 吸収端における磁気散乱 シンチレーション (左) APD (右)

上図は同種の Co/Cu 多層膜における Co 吸収端の磁気散乱実験の結果である。左が APS において高計数率 NaI シンチレーション検出器で測定したもの、右が SPring-8 において APD 検出器で測定したもの (図 6.6 下図) である。ピークにおける計数率はそれぞれ 3×10^4 cps (シンチレーション)、 5×10^6 cps (APD) である。また 1 次ピークの測定時間は 8 時間 (シンチレーション) と 1 時間 (APD) であるが、エラーバーはシンチレーション検出器で測定した結果の方がはるかに大きい。エラーバーを考慮するとシグナルの大きさはほぼ同じであることから再現性が確認できる。

また、APD 検出器系を用いた高計数率測定により Co 磁気散乱のさらに 1/10 程度、電荷散乱の 0.01% オーダーしかない Cu の磁気散乱測定が可能になったことが示された (図 6.6)。CuK 端の測定において最も電荷散乱の強い 1 次ピークの測定では、スキャン 2 回の合計 80 分、さらに磁場を反転させて 80 分、合計 160 分を要した。このときのピークにおける計数率は 6.8×10^6 cps であった。図 6.6 に示したものと同精度の測定を NaI シンチレーション検出器で行うためには、その許容計数率が 3×10^4 cps 程度であるために 220 倍以上、合計 600 時間以上かかる計算になり、1 次ピークでさえ事実上測定不可能である。0.01% オーダーの磁気散乱測定は APD 検出器を用いた磁気散乱測定システムとデータ処理によって初めて可能となったと言える。

以上のことからアバランシェ・フォトダイオード検出器を用いた磁気散乱測定法は円偏光放射光による X 線共鳴磁気散乱に対して非常に有効であると言える。

次にこの結果を磁性薄膜に応用した 2 例を示す。

第7章 APD 検出器を用いた磁気散乱測定法の薄膜磁性研究への応用

7.1 Fe/Au 多層膜

7.1.1 試料

試料は超高真空蒸着装置で作成された。試料の構造は設計値で

FA10 : Cr(1.5nm)/{Au(3.4nm)/Fe(1.2nm)}₃₁/Ag(50nm)/Cr(5nm)/MgO

である。X線鏡面反射率測定とシミュレーション結果を示す。シンボルが実験データ、実線が計算曲線である。

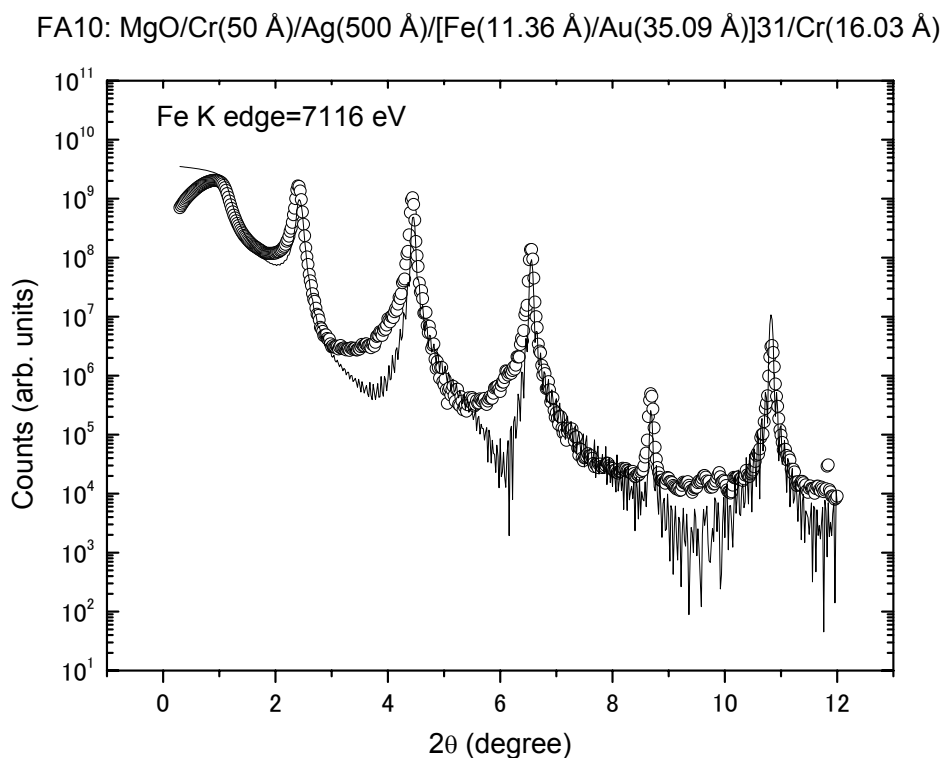


図 7.1 FA10 の X 線鏡面反射率

シミュレーションより決定した構造は

Cr(16.3 Å)/{Au(35.09 Å)/Fe(11.36 Å)}₃₁/Ag(500 Å)/Cr(50 Å)/MgO

である。

7.1.2 共鳴 X 線磁気散乱実験

X 線共鳴磁気散乱実験は Co/Cu 多層膜と同じ SPring-8 BL39XU において FeK 吸収端 (7116 eV) で行った。測定系は 2 章と同様でありまた実験配置は図 2.1 と同様である。但し、吸収板として Al フォイルの代わりに Mo フォイルを用いた。これは Al に比べ Mo の方がより三倍波の影響を減じることができるためである。

XAS (吸収測定) と XMCD から求めた散乱因子を示す。散乱因子はこれら測定結果から (3.60) (3.61) 式を用いて磁気散乱因子の虚数項 f_m'' および電荷散乱因子の虚数項 f_c'' を導出し、その結果を Kramers-Kronig 変換することでそれぞれの実数項 f_m' , f_c' を導いた。吸収実験に使用した試料はポリイミド基板で多層膜構造は散乱用の MgO 基板試料と同じものである。

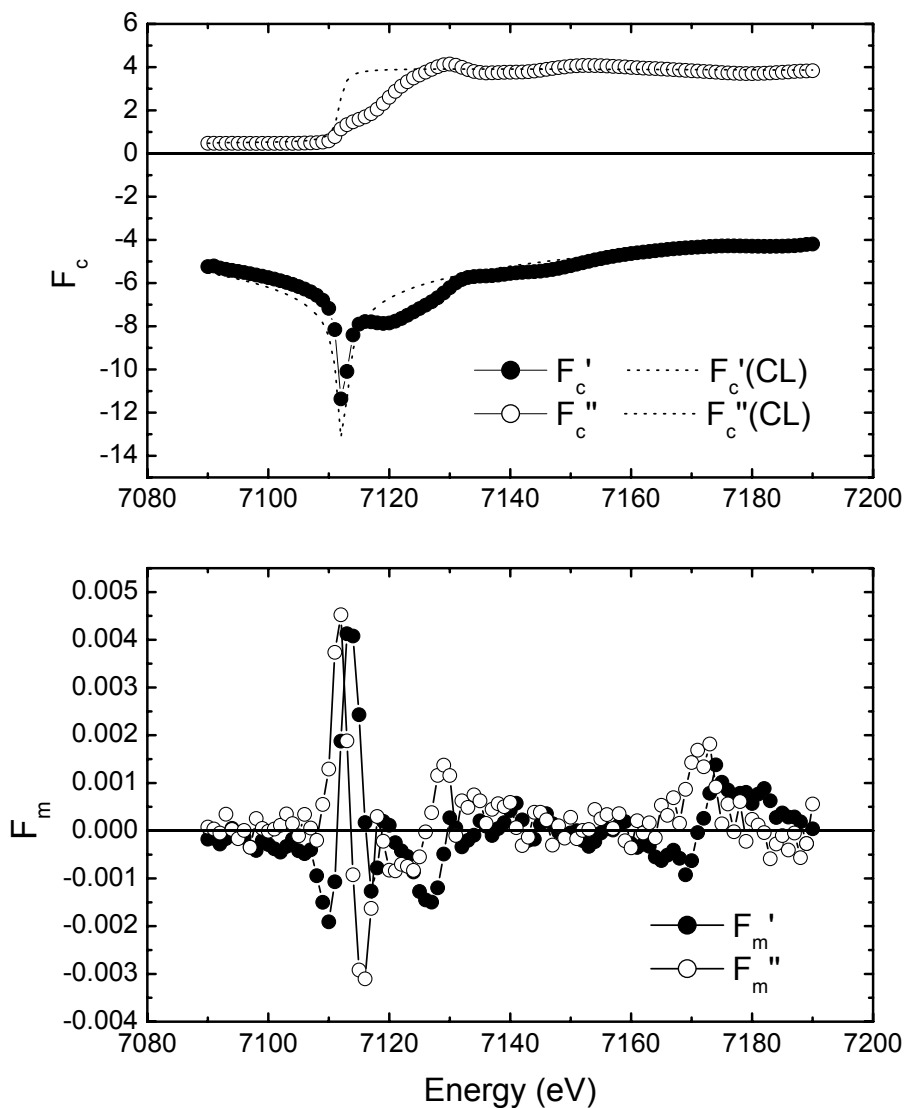


図 7.2 電荷散乱因子 (上) と磁気散乱因子 (下)

図中、点線はCromer-Liebermanの計算による孤立原子に対する電荷散乱因子 $f_c'(CL)$ および $f_c''(CL)$ である。中抜きのシンボル (○) が電荷散乱因子と磁気散乱因子の虚数項 f_c'' , f_m'' であり、黒丸のシンボル (●) が実数項 f_c' , f_m' である。

	電荷実数項 f_c'	電荷虚数項 f_c''	磁気実数項 f_m'	磁気虚数項 f_m''
Fe Kedge	-7.78241	1.698270	1.7094E-04	-3.1026E-03

7.1.3 結果と考察

以下に磁気散乱実験の結果および上記で求めた磁気散乱因子を用いて計算した磁気散乱シミュレーションの結果を示す。実験結果は前章の Co/Cu 多層膜と同様、2つの磁場で測定した差強度の差を取ったものである。

FA10: MgO/Cr(50 Å)/Ag(500 Å)/[Fe(11.36 Å)/Au(35.09 Å)]31/Cr(16.03 Å)
Fe K edge=7116 eV

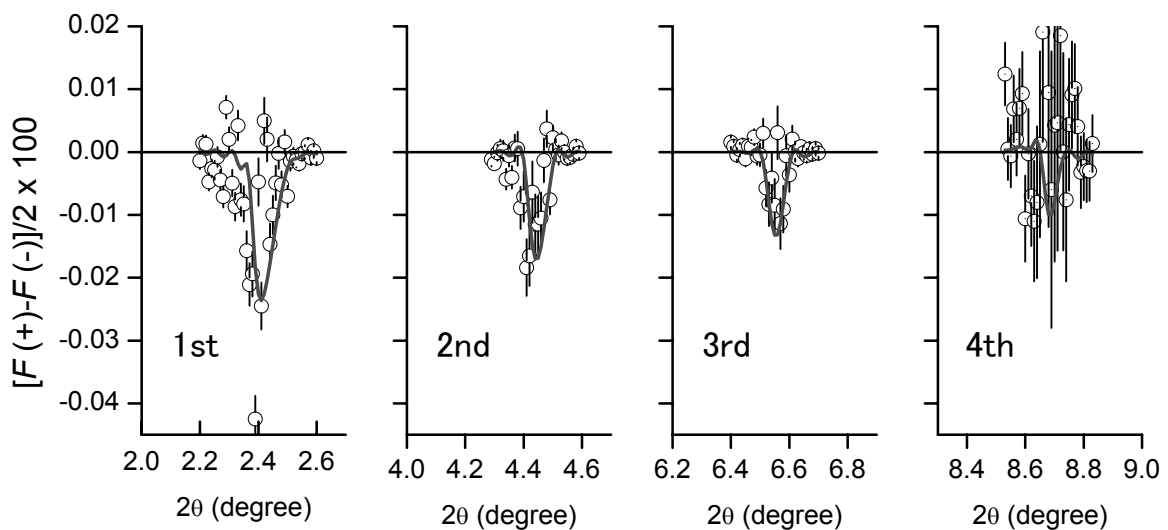


図 7.3 磁気散乱ピーク

白抜きのシンボルが実験結果（差強度の差）、実線がシミュレーション結果である。シミュレーションは Ishimatsu らの方法を用いた[1]。この計算には多層膜の化学構造、電荷散乱因子および磁気散乱因子の実数項 f_c' , f_m' および虚数項 f_c'' , f_m'' 、そして磁気構造モデルが必要となる。磁気散乱シミュレーションに用いる磁気散乱因子は XMCD 実験から算出したものである。よってこの磁気散乱因子の値は共鳴元素の層内部の磁

気散乱因子の平均値でしかなく、解析に用いる磁気構造モデル（磁気分極モデル）はこの磁気散乱因子の分布を示す比例係数である。上図の磁気散乱シミュレーションに用いた Fe 層の磁気分極モデルは印加磁場方向に一様に磁化したモデルであり、その大きさは XMCD から求めた磁気散乱因子をそのまま用いている。

4 次のブラッグピークはばらつきが大きく磁気散乱ピークを測定できていないが、1 次から 3 次の実験データとシミュレーション結果はその符合と大きさがよく一致している。

7.2 Co/Cu/Gd/Cu 多層膜

7.2.1 試料

実験に用いた試料の構造は設計値で

CCG205 : Cu(1nm)/{Cu(1nm)/Gd(3nm)/Cu(1nm)/Co(3nm)}x15/Si-sub

である。X線鏡面反射率測定の結果を図7.4に示す。

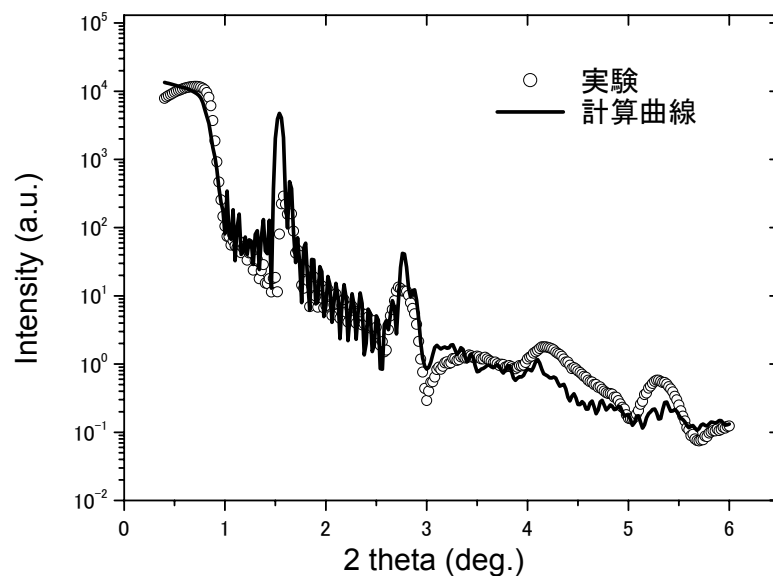


図 7.4 X線鏡面反射率

X線鏡面反射率のシミュレーションより決定した周期構造は次の通りである。

{Cu (0.88nm)/Gd (2.89nm)/Cu (0.88nm)/Co (2.90nm)}

この結果、1周期の厚さは7.55nmとなる。ただし反射率のシミュレーションを見ると多層膜の周期構造に起因するブラッグピークの角度は一致しているものの、その大きさは合っていない。しかし、たとえ界面ラフネスの大きさを変えて計算してもピークの大きさはほとんど変わることはなくベースラインの落ちかたのみが変化する。これは実際の試料の膜厚のばらつきや界面ラフネスが、シミュレーションが仮定している多層構造モデルから外れているためである。そのため多層膜構造の1周期7.55nmを固定したままGd, Co, Cu層の膜厚を変化させ、実験結果の1次ブラッグピークと2次ブラッグピークの強度比(2次/1次 約0.03)を再現する膜厚比を求め、これを各

層の平均膜厚とする。

まず、Cu 層の膜厚を 0.88nm に固定し、Gd 層と Co 層の厚さを変化させピーク強度比（2次/1次）を求めた。

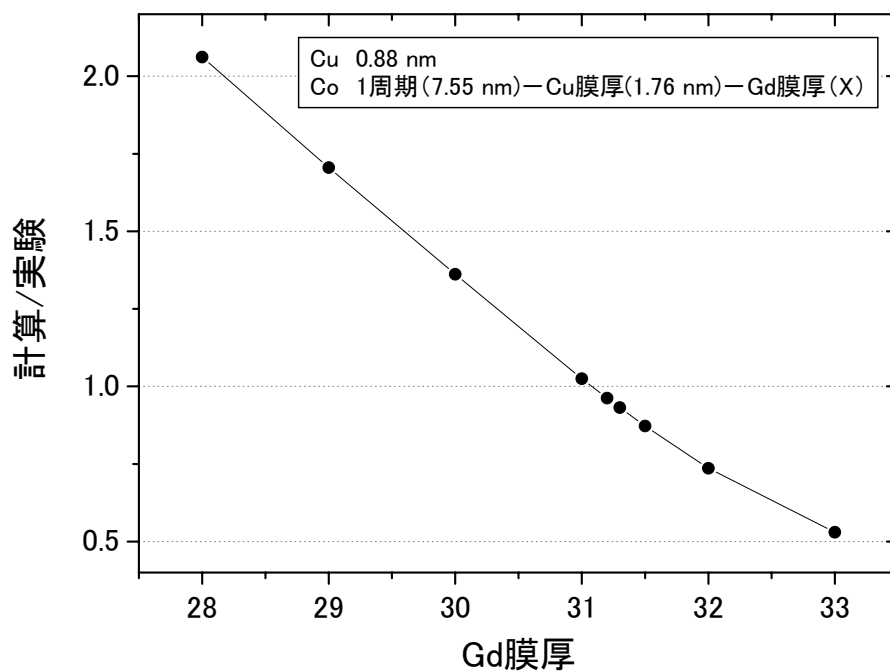


図 7.5 電荷散乱 Bragg ピーク強度の比（2次/1次）計算値/実験値

さらに Cu 層の膜厚を振り同様の計算を行った結果、Gd 層の平均膜厚を 31Å、Co 層を 26.9Å、Cu 層を 8.8Åと決定した。

また同じ構造を持つ他試料の X 線粉末回折装置による高角の X 線回折実験の結果、多層膜由来のピークは見られず、中角域にもピークが現れないことから多層膜の結晶構造は元素の種類に拠らずアモルファスであると考えられる。

7.2.2 磁化測定

試料振動型磁気測定 VSM により Co/Cu/Gd/Cu 多層膜の磁化測定を行った。測定はクライオスタットにより 20 K から 300 K まで 20 K おきに温度変化させ合計 15 点で行った。結果を図 7.6 に示す。

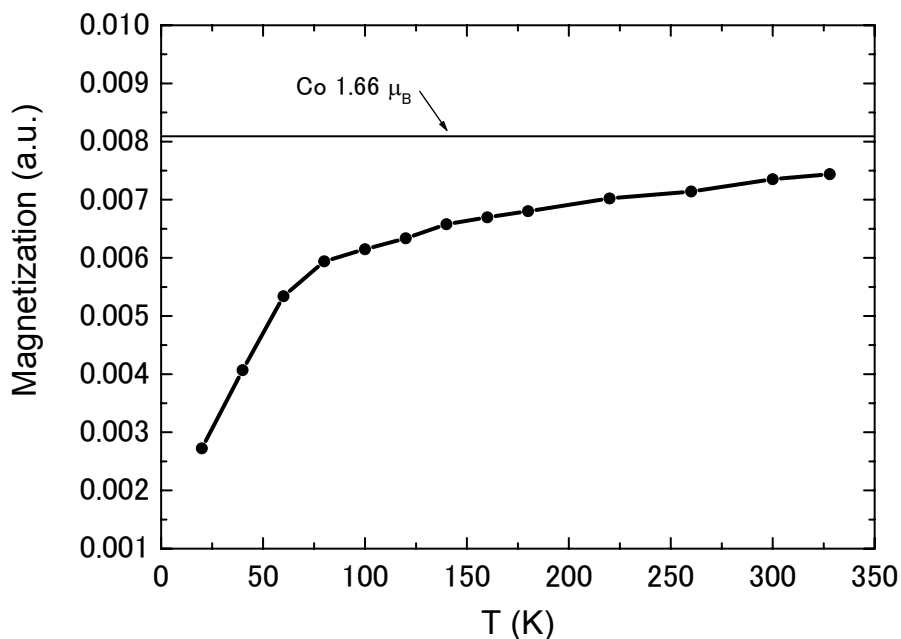


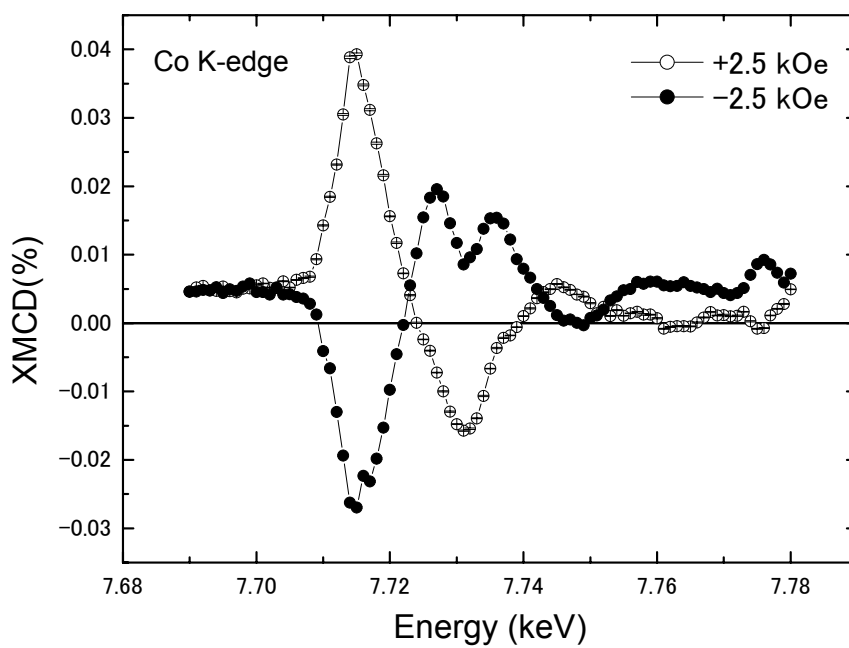
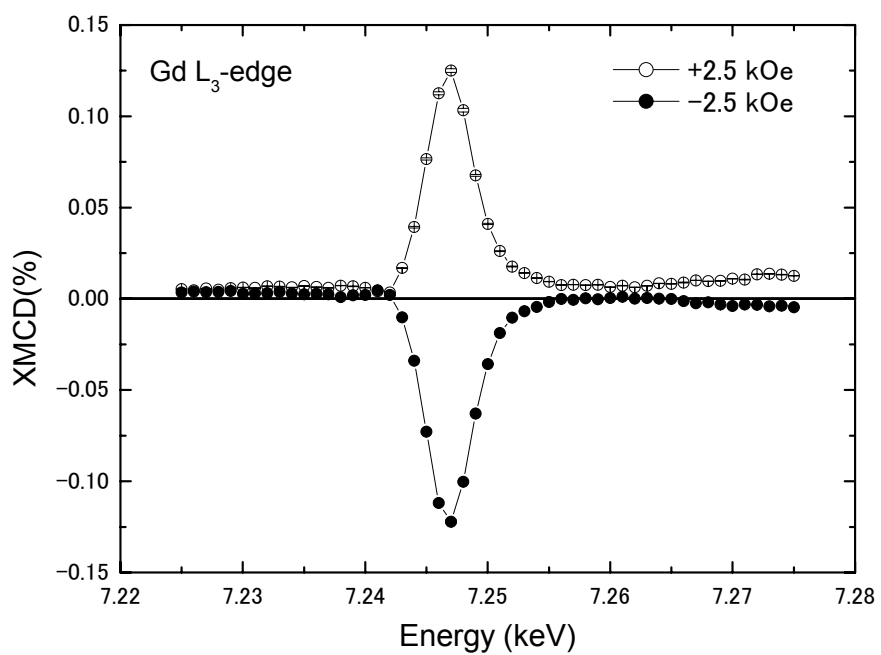
図 7.6 Co/Cu/Gd/Cu 多層膜磁化の温度変化

図中上部の直線は Co/Cu/Gd/Cu 多層膜における Co の磁化を Co 単層膜の磁化測定結果 (Co ; 1.66 μ_B /atom) より見積もったもの。また印加磁場と試料の成す角を変えて測定した同種試料の MH 測定結果より、多層膜に結晶磁気異方性はなく磁化容易軸は面内方向であると考えられる。

7.2.3 X 線共鳴磁気散乱実験

X 線共鳴磁気散乱実験は SPring-8 のビームライン BL39XU において行った。散乱因子および X 線のエネルギーを決定するために XMCD 実験を行った。これに使用した試料は {Gd(30 nm)/Cu(1 nm)}x50 と Co(85.3 nm) をカプトン上に蒸着したものである。測定時の印加磁場は ± 2.5 kOe である。結果を図 7.7 に示し、ここから求めた散乱因子を図 7.8 (Gd) , 図 7.9 (Co) に示す。それぞれ 2 つの図のうち上図が電荷散乱因子、下図が磁気散乱因子である。これらの結果より決定し使用した X 線のエネルギーは Gd L_3 -edge (7245 eV), Co K-edge (7723 eV) である。

	電荷実数項 f'_c	電荷虚数項 f''_c	磁気実数項 f'_m	磁気虚数項 f''_m
CoK-edge	-7.3763	3.646881	-4.0809E-03	5.590E-05
Gd L_3 -edge	-29.2501	15.34339	0.062774	-0.06131



☒7.7 XMCD Gd L₃-edge (上) Co K-edge (下)

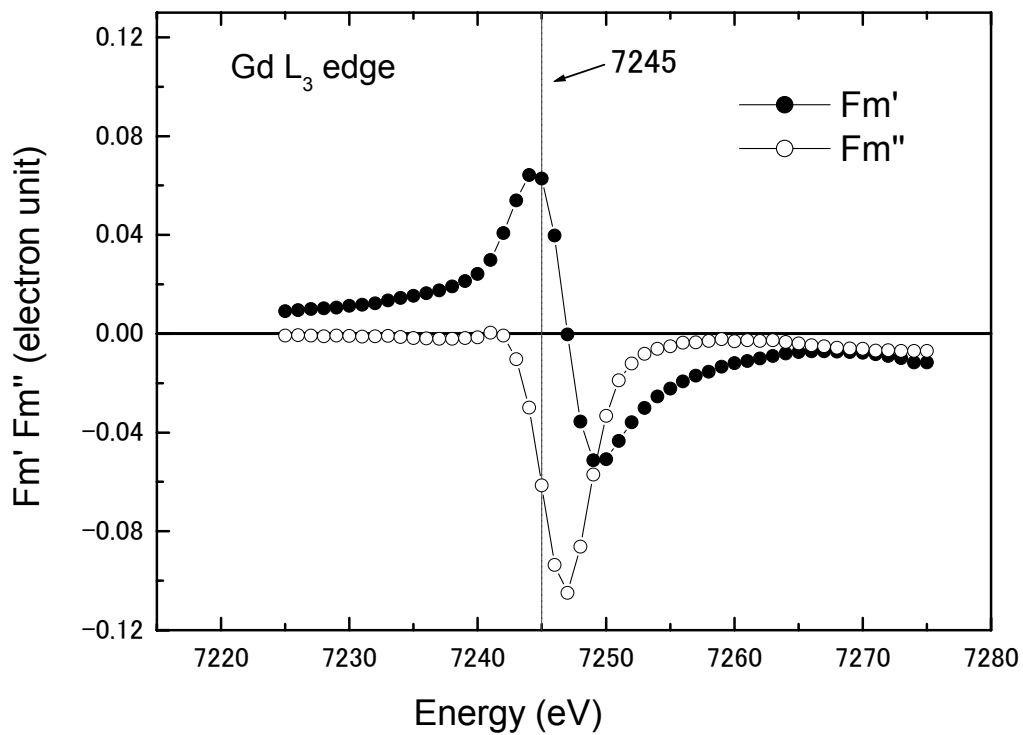
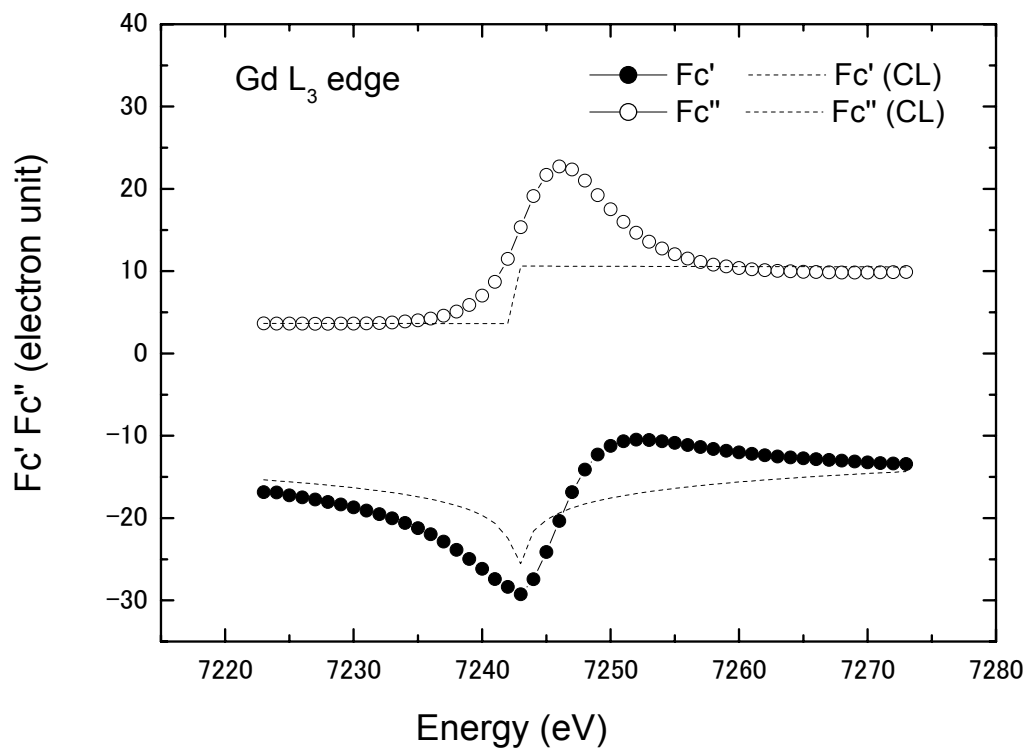


図 7.8 Gd 電荷散乱因子 (上) と磁気散乱因子 (下)

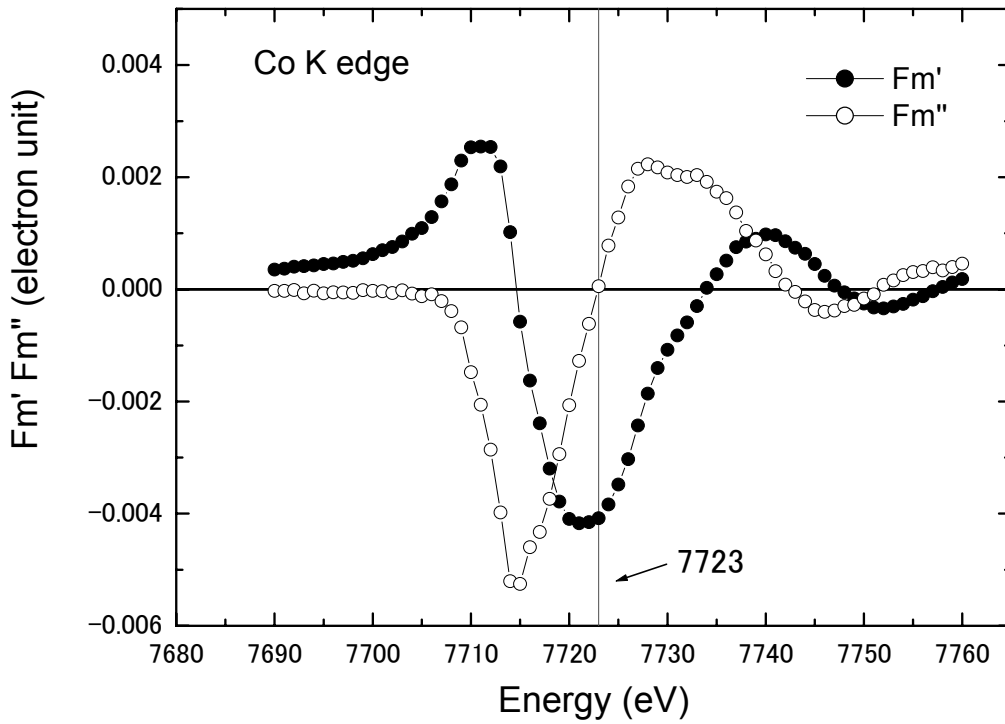
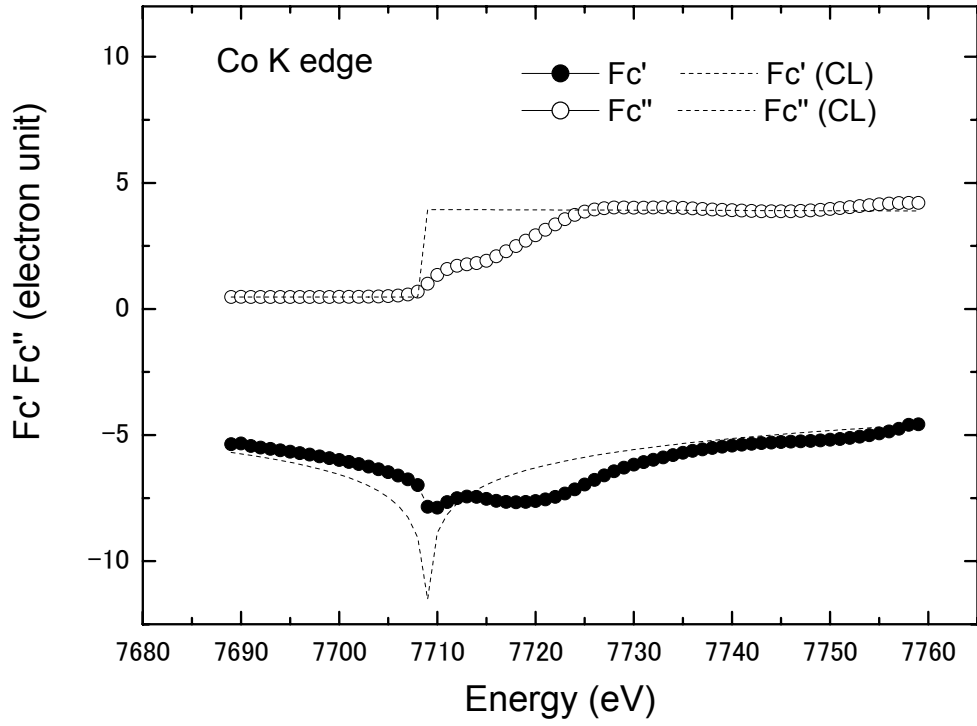


図 7.9 Co 電荷散乱因子 (上) と磁気散乱因子 (下)

7.2.4 結果と考察

X線共鳴磁気散乱測定の結果を以下に示す。

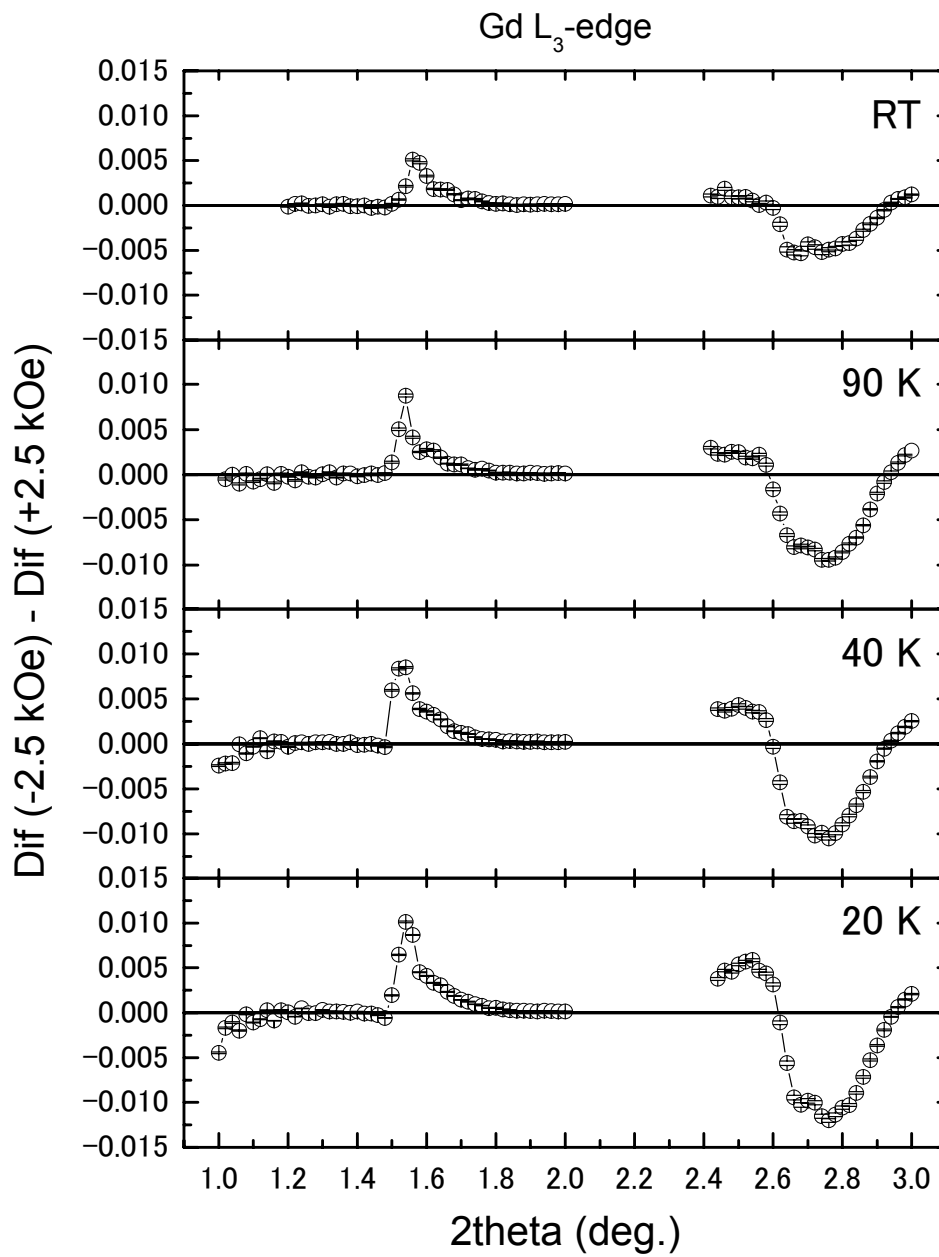


図 7.10 Gd X線共鳴磁気散乱ブラッグピークの温度依存

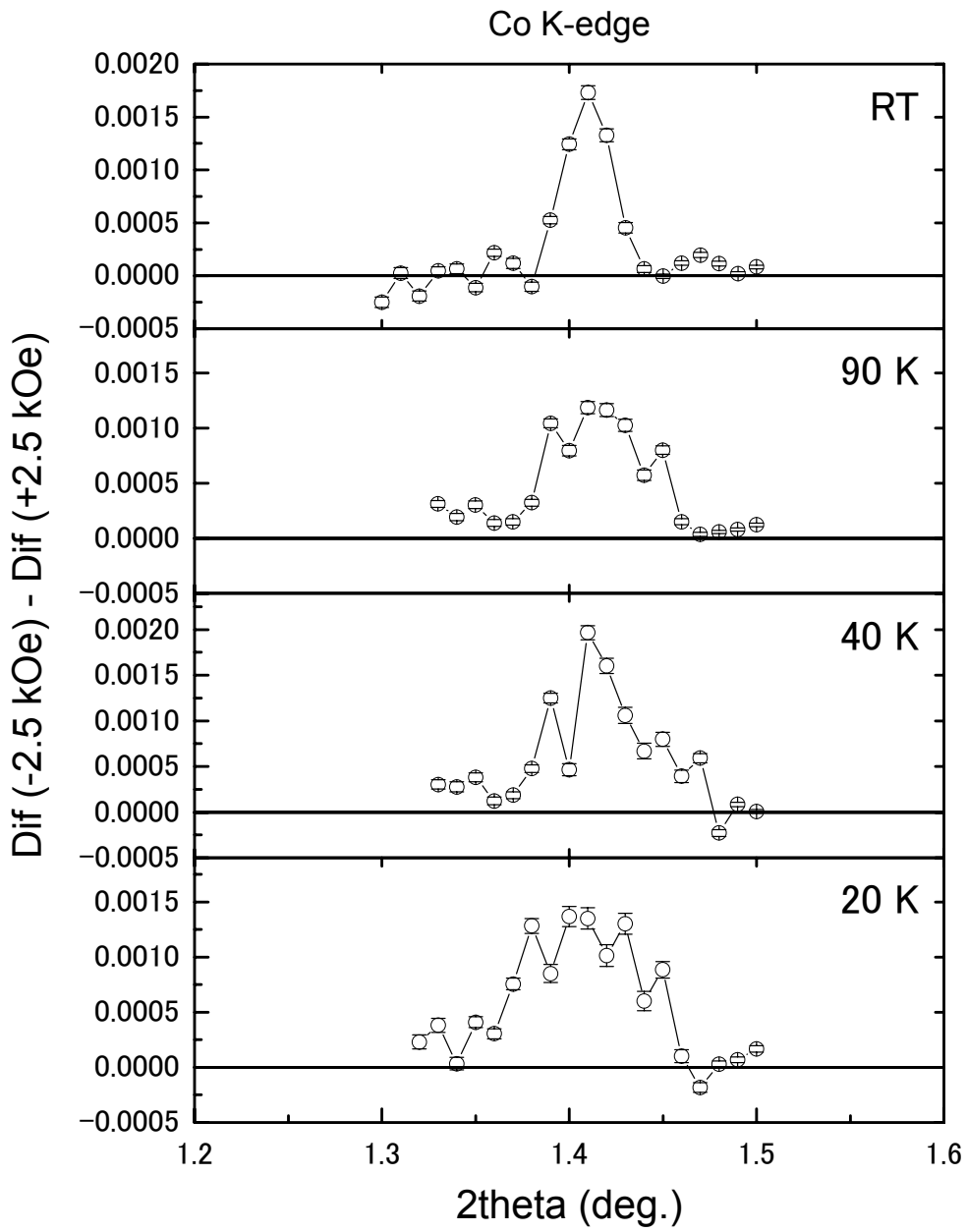


図 7.11 Co X線共鳴磁気散乱ブラッグピークの温度依存

図 7.12 に印加磁場方向と X 線進行方向が 90° の角をなす配置においてエネルギー-Gd L_3 -edge, 温度 90 K で測定した磁気散乱ピークを示す。

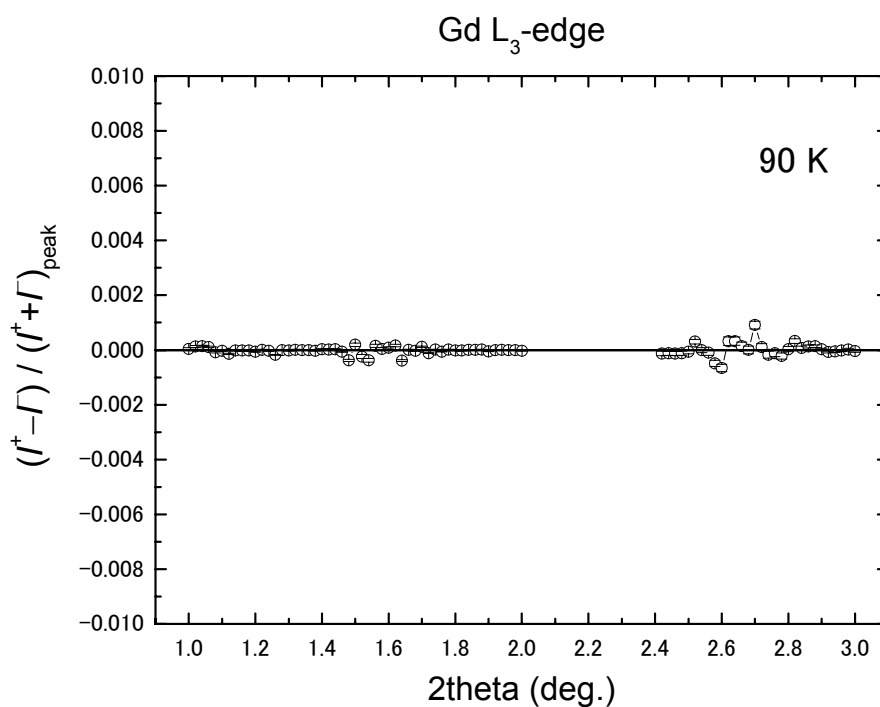


図 7.12 Gd 90° 配置における X 線共鳴磁気散乱ブラッグピーク

磁化測定結果 (図 7.6) より Co モーメントと Gd モーメントはそれぞれ印加磁場方向と反対方向をそれぞれ向いていると予想される。まず Gd 層について印加磁場と反対方向に一様に磁化しているモデルで計算すると以下のようなになる。

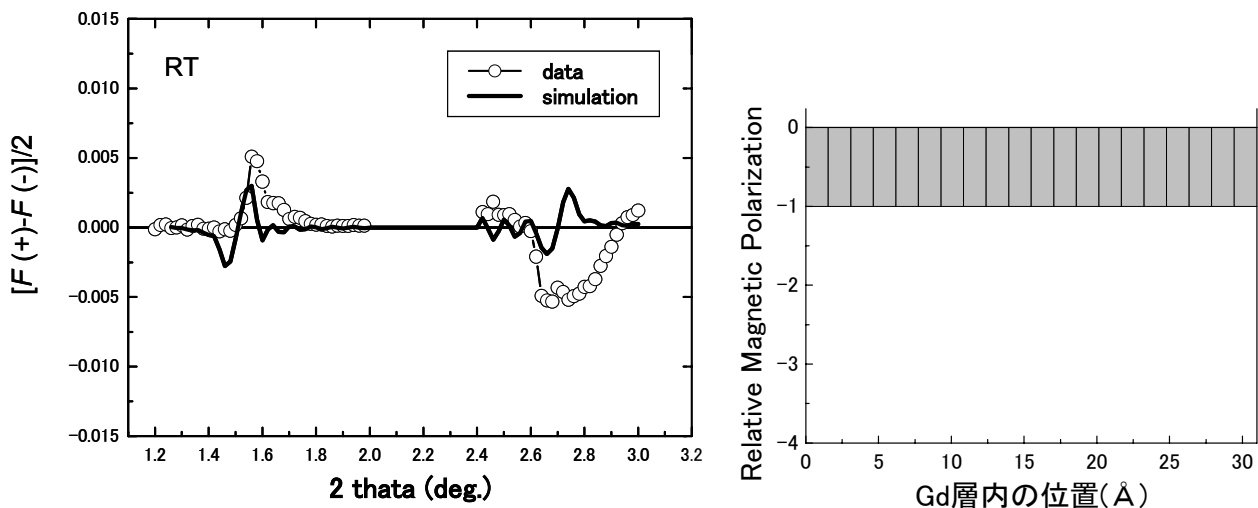


図 7.13 Gd 磁気散乱シミュレーション (左) と磁気分極モデル (右)

左図が磁気散乱ピーク、右図がシミュレーションを行った磁気分極モデル。図中、中抜きシンボルが実験結果、実線がシミュレーションである。シミュレーション結果を見ると実験結果と異なり1次ピーク2次ピークともに正のピークとなっている。逆にGd層の磁気分極を印加磁場方向へ変えたとしても1次、2次両ピークの符号が負になるだけであり実験結果のように正負2つのピークは再現できない。次に比較的实验結果をよく再現しているモデルの一例を挙げる。

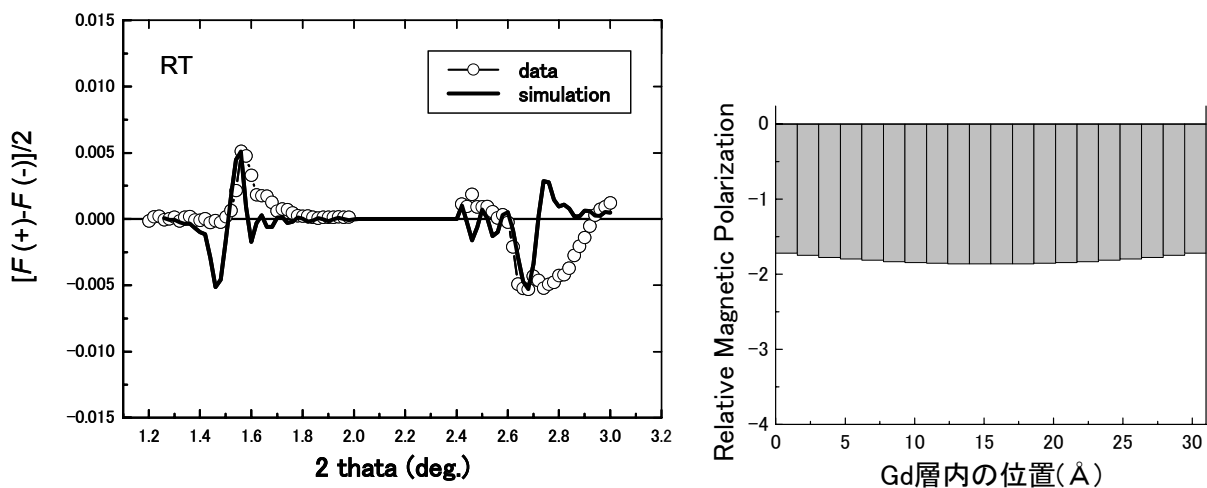


図 7.14 Gd 磁気散乱シミュレーション (左) と磁気分極モデル (右)

このモデルは Gd 層の中央部が大きく、界面に向かうに従いなだらかに減少している。2 次ピークが負に出ており、また計算の 1 次ピークと 2 次ピークの強度比は実験結果とよく一致している。しかしモデルの磁気分極が XMCD から予測されるものより大きいことや計算の 1 次ブラッグの形状が依然微分型であることなど不一致も多くさらに検討が必要と考えられるが、少なくとも Gd 層の磁化が一様分布していないことは予測できる。以上は室温での結果であるが、その他の温度も磁気散乱ピークの形状は室温のものと相似形であるため (図 7.10)、図 7.14 程度に合う分布モデルは定数倍すればよく、形状を変えることはない。

次に同様の計算結果を Co について示す。

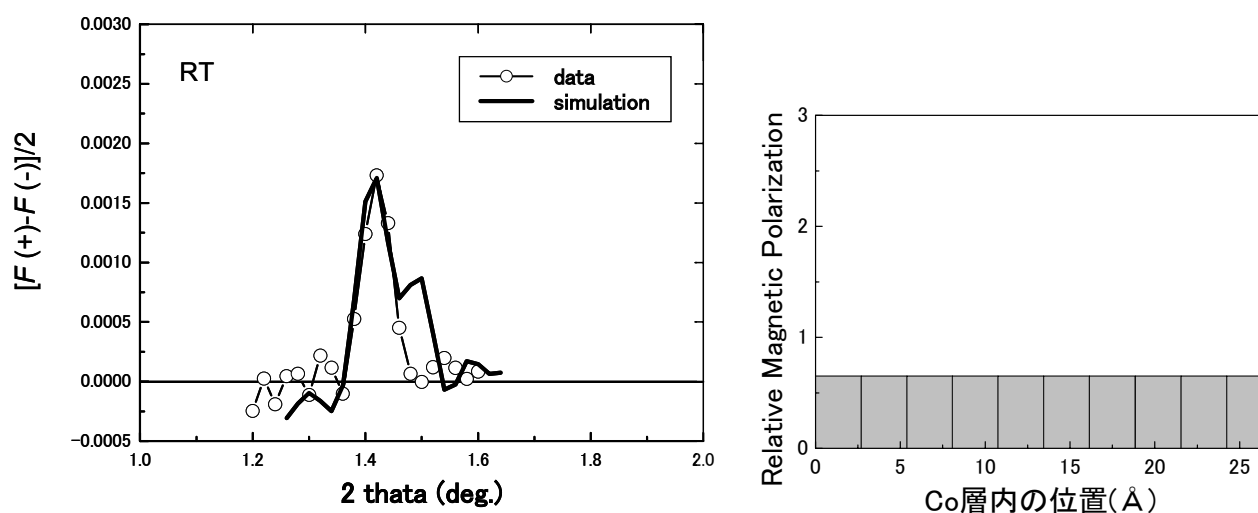


図 7.15 Co 磁気散乱シミュレーション (左) と磁気分極モデル (右)

Co 層は一様磁化モデルで実験を再現できたが、こちらもその大きさが XMCD から予測される値の 65%しかない。

次に、磁気散乱実験結果のピーク強度の温度変化の図を示す。

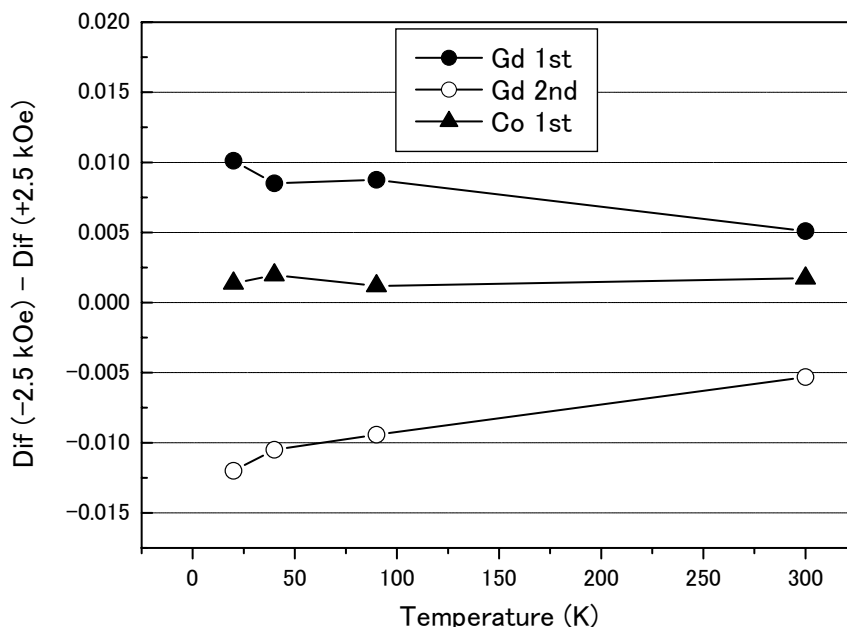


図 7.16 磁気散乱ピーク強度の温度依存

これを見ると Gd のモーメントは温度上昇とともに減少していることがわかる。一方 Co 層のモーメントは殆ど温度変化していない。Co 磁化が 20K から 300K の範囲で温度に依らずほぼ一定であるとすれば Co/Cu/Gd/Cu 多層膜の磁化の温度変化を担うのは Gd 層の磁化である。磁気散乱から求めた Gd の磁気分極の温度変化はそのまま Co/Cu/Gd/Cu 多層膜の磁化の温度変化であると考えられる。この結果は定性的には磁化測定結果 (図 7.6) から予測される Gd 層、Co 層それぞれの磁気構造を裏付けている。バルク Gd のキュリー温度は ~ 293 K であるが Ohkochi らの Gd/Cu 多層膜に関する報告によれば Cu 層で挟まれた Gd 層の磁化はスペーサ Cu 層の厚さにもよるが ~ 150 K までに急激に減少し 200 K では軒並みその磁化を失っているが[20]、本実験結果によると Gd 層のモーメントは室温においても残存している。また 90° 配置 (図 7.12) の結果、磁気シグナルは得られず、Gd 層の磁化は印加磁場と角度をなす成分はないと考えられる。

以上の結果を考慮すれば Cu 層を挟んだ Co 層と Gd 層の間の反強磁性的な磁気結合のために、本来消失しているであろう室温においても Gd 層の磁化が残存していることが考えられる。

第 8 章 総括

磁気散乱は 3d 金属の K 吸収端において電荷散乱の 0.1% という微弱な信号である。これを測定するため、従来の NaI シンチレーション検出器に代わり、APD 検出器および高速カウンターを用いた高速・高計数率測定システムを開発し、Co/Cu 多層膜の磁気散乱実験を通してその有効性を確かめた。

従来の NaI シンチレーション検出器による測定では、ダイヤモンド位相子により作り出した左右円偏光でその入射強度が数%異なるために発生するバックグラウンドを避ける方法として、計数率を 10^4 cps 程度まで落とすことにより微小なシグナルの測定を可能にしていた。今回、開発した APD 検出器を用いた測定法では、シンクロトロン放射光の時間構造を考慮した数え落とし補正を施すことで従来の NaI シンチレーション検出器より 2 桁高い、最大計数率 $< 8 \times 10^6$ cps までの高係数率で 0.1% オーダーのシグナルの検出が可能であることが確認された。また、この高計数率測定により、測定時間が 1/10 程度にまで短縮し、さらに短時間に大量の光子を蓄積できることから磁気散乱シグナルの S/N はシンチレーション検出器による測定と比較して一桁程度改善された (図 6.7)。

また、この結果に基づいてその磁気散乱強度が電荷散乱の 0.01% オーダーしかない Cu 端 (Co/Cu 多層膜)、Fe 端 (Fe/Au 多層膜) の磁気散乱を測定し、明瞭な磁気散乱シグナルを得た。特に Fe 端の結果では XMCD から求めた磁気散乱因子とコンシステントな一様磁化モデルで定量的に説明することができた。さらに Co/Cu/Gd/Cu 多層膜における Co 端、Gd 端の磁気散乱をクライオスタットにより試料温度を変えながら 10 数本測定した。新しい測定法により短時間にこれだけ多数の測定を行ったことからその有効性が確認できた。

参考文献

- [1] B.Dieny, V.S. Speriosu, S.S.P. Parkin, B.A. Gurney, D.R. Wilhoit, D. Mauri, Phys. Rev B **43** 1297 (1991)
- [2] N. Ishimatsu, H. Hashizume, S. Hamada, H. Hosoito, C.S. Nelson, C.T. Venkataraman, G. Srajer and J.C. Lang, Phys. Rev. B **60** 9596 (1999)
- [3] K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima, H. Kawata, J.Phys.Sco.Jpn. **54** 4099 (1985)
- [4] C. Veittier, D.B. McWhan, E.M. Gyogy, J. Kwo, B.M. Buntshuh and B.W. Batterman, Phys. Rev. Lett. **56** 757 (1986)
- [5] C.-C. Kao, C.T. Chen, H.J. Lin, G.H. Ho, G. Meigs, J.-M. Brot, S.L. Hulbert, Y.U. Idzerda and C.Vetier, Phys. Rev. B **50** 9599 (1994)
- [6] S.Kishimoto, Rev. Sci. Instrum. **63** 824 (1992)
- [7] S. Kishimoto, N. Ishizawa and T.P. Vaalsta, Rev. Sci. Instrum. **69** 384 (1998)
- [8] A. Q. R. Baron, R. Rüffer and J. Metge, Nucl. Instr. and Meth. A **400** 124 (1997)
- [9] S. Marchesini, O. Ulrich, G. Faigel, M. Tegze, M. Belakhovsky, A. S. Simionovici, Nucl. Instr. and Meth. A **457** 601 (2001)
- [10] Kouich Hayashi, Yukio Takahashi, Ei-ichiro Matubara, Shunji Kishimoto, Takeharu Mori and Masahiko Tanaka, Nucl. Instr. and Meth. B **196** 180 (2002)
- [11] H.Hashizume, N.Ishimatsu, O.Sakata, T.Iizuka, N.Hosoito, T.Emoto, K.B.Lee, D.R.Lee, T.Iwazumi, Jpn. J. Appl. Phys **36** 4525 (1997)
- [12] D.R.Lee, Y.J.Park, S.H.Park, Y.H.Jeong, K.B.Lee, N.Ishimatsu, H.Hashizume, N.Hosoito, Physica B **248** 146 (1998)
- [13] H.Hashizume, N.Ishimatsu, O.Sakata, T.Iizuka, N.Hosoito, K.Namikawa, T.Iwazumi, G.Srajer, C.T.Venkataraman, J.C.Lang, C.S.Nelson and L.E.Berman, Physica B **248** 133 (1998)
- [14] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys. **37** L1488 (1998)
- [15] 菊田星志, X線散乱・回折技術 上, 1992, 東京大学出版
- [16] K.Hirano, H.Maruyama, Jpn. J. Appl. Phys. **36** L1272 (1997)
- [17] L. G. Parratt, Phys. Rev. **95** 359 (1954)
- [18] S. W. Lovesey and S. P. Collins X-ray Scattering and Absorption by Magnetic Materials (Oxford Univ. Press)
- [19] S. S. P. Parkin, R. Bhadra and K. P. Roshe, Phys. Rev. Lett. **66** 2152 (1991)
- [20] Takuo Ohkochi, et al. J. Phys. Soc. Jpn. **73** 2212 (2004)

謝辞

本論文の審査ならびに貴重なご指導を頂きました、奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科 片岡幹雄教授、大門寛教授、高橋明教授、細糸信好助教授、内山潔助教授に厚く御礼申し上げます。特に、細糸信好助教授には本研究の遂行および論文作成全般について常に適切な助言および指導を頂きました。ここに深謝申し上げます。

放射光施設における実験にあたり多大な協力を頂きました鈴木基寛氏、河村直己氏 (SPring-8 BL39XU)、Dr. DANIEL HASKEL, Dr. GEORGE SRAJER (Advanced Photon Source 4-ID-D) に感謝申し上げます。

奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科ナノ構造磁気科学講座の國府竜馬氏、児玉謙司氏、増井崇人氏、山崎寛範氏、石橋晃一氏、小池崇氏、山岸隆一郎氏、京都大学化学研究所の大河内拓雄氏には研究を進めるにあたり放射光実験における協力はもとより、数々の議論をしていただきましたこと感謝致します。

最後に、本研究を進めるにあたり指導・助言を頂き、また支えて下さいましたすべての方に感謝申し上げます。