

多層膜偏光子を用いた極紫外磁気旋光分光

斉藤勝彦*, 羽多野忠, 井桁光昭, 胡衛兵, 江島丈雄, 渡辺誠

東北大学多元物質科学研究所*

Extreme Ultraviolet Magnetic Rotation Spectroscopy Using Multilayer Polarizers

Katsuhiko SAITO, Tadashi HATANO, Mitsuaki IGETA,

Weibing HU, Takeo EJIMA and Makoto WATANABE

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

Abstract

The multilayer polarizers for the use of 50–90 eV were developed. Utilizing the multilayer polarizers, Faraday and longitudinal magnetic-Kerr rotation measurements were performed on a Ni film around its $M_{2,3}$ edges using synchrotron radiation, and the consistency of the results of both measurements was checked. The consistency with the result of the magnetic circular dichroism measurement was also checked. In addition, Faraday rotation measurement on a Co/Pt magnetic multilayer was performed, and the usefulness of the magnetic rotation measurements was demonstrated.

1. はじめに

極紫外・軟 X 線領域における、内殻吸収端近傍での共鳴磁気光学効果の測定は、磁性体研究の強力な手段である。放射光施設の発展により1980年代後半から始まったこの分野における実験では、強度測定法である磁気円二色性 (MCD) 測定が多く用いられている。しかし MCD 測定では、円偏光の偏光状態についての曖昧さが問題となる。また、ヘリシティを切り替えても同一の条件で強度測定が行えていることの保証が必要である¹⁾。

一方、極紫外・軟 X 線領域における光学素子として、干渉作用を利用した光学多層膜が開発されている。多層膜偏光子を用いて偏光測定を行うと、磁気旋光測定、すなわちファラデー回転測定と磁気カー回転測定が可能となる。すでに、 $3d$ 遷移金属の $L_{2,3}$ 吸収端近傍でのファラデー回転測定および磁気カー回転測定が数例行われ²⁻⁴⁾、軟 X 線磁気旋光測定の有用性が実証されている。しかし磁気旋光測定の例は、MCD 測定に比べて非常に少ない。これは、測定波長領域で利用可能な偏光子の開発を合わせて行わなければならないことが最大の原因と考えられる。もし偏光子が自由に入手できれば、直線偏光しか得られないビームラインであっても容易に磁気分光の研究が行えることになる。また、ファラデー回転測定の場合、直線偏光度は必ずしも1である必要がなく、円偏光度の値が直接測定値に影響する MCD 測定のような曖昧さが生じない。

本稿では、高反射率多層膜鏡の応用である反射型多層膜偏光子の作製法、特に多層膜を構成する物質対の選択基準

と、作製した多層膜偏光子の評価例を合わせて述べるとともに、多層膜偏光子を利用して現在進めている、 $3d$ 遷移金属の $M_{2,3}$ 吸収端近傍での磁気旋光分光実験の現状や有用性などを報告する。

2. 多層膜偏光子

2.1 多層膜反射鏡の物質対選択

極紫外・軟 X 線領域では、表面あるいは単一界面からの直入射反射率は非常に低い。斜入射配置の全反射を用いずに反射率を得るには、多層膜が有効である。これは、表面や多数の界面からの反射を強め合うように干渉させて反射率の増大を図るもので、多くの場合、2種類の物質を周期的に積層したものが利用される。多層膜で高い反射率を得るには、1) 多くの界面からの反射が寄与することが望まれる。したがって層数を稼ぐため、できるだけ複素屈折率の虚部が小さい (吸収の小さい) 物質群が多層膜構成物質の選択対象となる。また、2) 1つの界面からの反射は強い方が良い。これは、直入射領域では複素屈折率の差の大きな2つの物質を利用することに相当する。実際には、多層膜の反射率の数値計算を種々の物質対に対して行う⁵⁾。

2.2 多層膜偏光子の物質対選択⁶⁾

多層膜を偏光子として用いる場合は、電場ベクトルの入射面内成分 (p 成分) と垂直成分 (s 成分) に対する反射率、 $|r_p|^2$ と $|r_s|^2$ が異なることを利用する。ここで、 r_p および r_s は、電場ベクトルの p 成分と s 成分に対する複素

* 東北大学多元物質科学研究所 〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1
TEL: 022-217-5378 Fax: 022-217-5379 E-mail: saikatsu@rism.tohoku.ac.jp

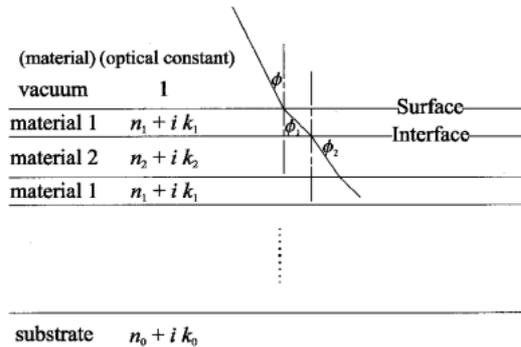


Figure 1. Definition of angle of incidence at the surface and angles of refraction at interfaces in the multilayer structure.

振幅反射係数である。多層膜偏光子の性能は偏光能 ($|r_s|^2 - |r_p|^2$) / ($|r_s|^2 + |r_p|^2$) で評価されるが、反射率も重要なファクターである。なぜなら反射率が低ければ測定のス/N比が落ちるし、逆に反射率が十分高ければ数回反射で偏光能を上げることもできるからである。

高い反射率を得るための物質対選択については前節で述べた。高い偏光能を得るには、多層膜界面での消光比 $|r_p/r_s|^2$ が十分小さくしなければならない。Figure 1 に多層膜構造の概略図を示す。図中の ϕ , ϕ_1 , ϕ_2 は、真空から表面第1層 (物質1) への入射角と (複素) 屈折角および物質1から物質2への (複素) 屈折角である。また、 n_i および k_i は、物質 i ($i=1, 2$) の複素屈折率の実部と虚部である。もし両方の物質が透明 ($k_1=k_2=0$) ならば、界面における p 成分の反射率は、

$$\phi_1 = \arctan \frac{n_2}{n_1} \quad (1)$$

で0となる。 ϕ_1 は界面のブルースター角である。(1)式の ϕ_1 をスネルの法則を用いて ϕ で書き直すと、ブルースター角に対応する真空からの入射角 ϕ (多層膜のブルースター角) は、

$$\phi = \phi_B \equiv \arcsin \frac{n_1 n_2}{\sqrt{n_1^2 + n_2^2}} \quad (2)$$

と表される。

両物質が透明でない場合、消光比が完全に0となる入射角 ϕ は存在しない。しかし、極小値をとる入射角が存在し、擬ブルースター角 ϕ'_B と呼ばれる。極紫外・軟X線領域では、一般に n は1に近いので、 ϕ'_B の値は45°近辺である。一方 k_1 , k_2 が1に比べて小さいことを用いると、 ϕ'_B と ϕ_B の差は極めて小さく、 k_1 と k_2 についての2次以上の項の和で書ける。 r_p/r_s を k_1 , k_2 の最低次の項のみで書くと、 $\phi = \phi_B$ においても $\phi = \phi'_B$ においても同じ形をとり、

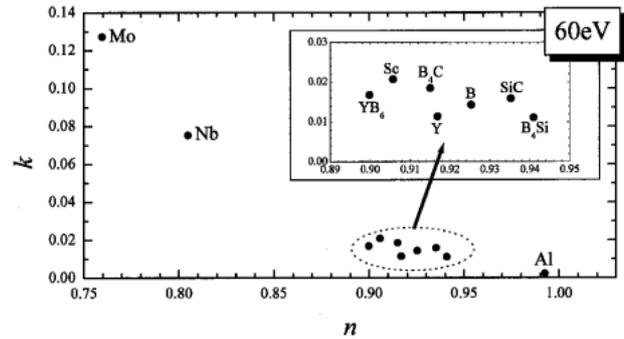


Figure 2. Complex-plane plot of the complex refractive indices ($n + ik$) of several materials at 60 eV.

$$\frac{r_p}{r_s} \approx -i \frac{n_1^2 + n_2^2}{2} \left(\frac{k_1 + k_2}{n_1^3 + n_2^3} \right) \quad (3)$$

と表される。(3)式から、 k_1 と k_2 がともに小さいことが $|r_p/r_s|$ の極小値をより小さくするために重要であることがわかる。

Figure 2 に、60 eV で Al との組み合わせを前提に選択した物質の光学定数を示す。これらのデータは、バークレー国立研究所の X 線光学センターがホームページ上で公開しているものである⁷⁾。点線で囲まれた物質は、Al との組み合わせで高い偏光能と反射率が得られる物質群である。また、比較物質として高反射率は得られるものの (Al と n の差の大きい)、偏光能が比較的低い (k が大きい) 物質として Mo と Nb も合わせて示してある。我々は現在、50~70 eV 用および70~90 eV 用多層膜偏光子の物質対として、化学的安定性等を考慮し Al と YB₆ および Mo と Si を選択し利用している。

2.3 多層膜偏光子の作製と評価

多層膜偏光子の作製は、マグネトロンスパッタ装置を用いて行った。スパッタリング条件一定のもとでの各物質の成膜速度の安定性は良く、膜厚をモニターすることなく時間制御のみで多層膜の作製が可能である。ただし、ターゲット物質の形状変化にともなう成膜速度の若干の変動があるため、小角 X 線回折測定により、作製した多層膜の周期構造を確認すると同時に成膜速度の随時更新を行った。

Figure 3 に、52 eV 用として作製した Al/YB₆ 多層膜偏光子の評価を例として示す。50~70 eV 領域用に選択した Al と YB₆ の組み合わせにとって、低エネルギー側は k が増大するため偏光能が比較的得にくくなるが、52 eV においても良好な偏光能が得られている。反射率は、設計値よりもやや低いものの、設計エネルギーで、40%にせまる s 成分反射率が得られている。

3. 極紫外磁気旋光分光

上に述べた多層膜偏光子を用いた、Ni 単層膜の $M_{2,3}$ 吸収端近傍領域での磁気旋光分光測定について述べる。行っ

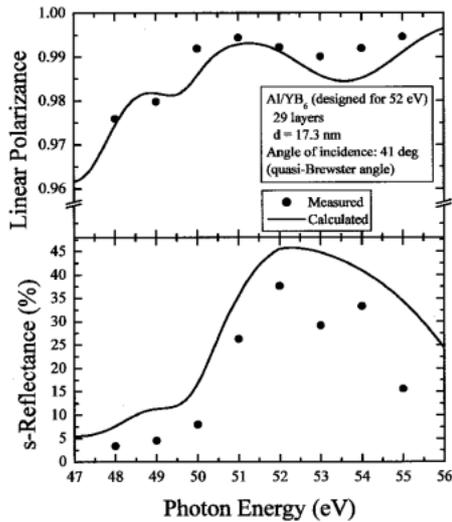


Figure 3. Polarizance and *s*-reflectance spectra of Al/YB₆ multilayer polarizer designed for 52 eV.

た磁気旋光分光測定は、透過型であるファラデー回転測定と反射型である磁気カー回転測定である。測定結果をMCD測定で得られた結果と比較し、妥当性や有用性を評価した。また、磁気旋光分光の多元素系への適用としてCo/Pt磁性多層膜のファラデー回転測定も行った。

3.1 磁気旋光分光測定装置

ファラデー回転測定と磁気カー回転測定は、それぞれ分子科学研究所 UVSOR の BL8B1 及び BL5B に磁気旋光分光測定装置を設置して行った。両測定装置の構成要素は基本的に等しく、入射強度モニター、透過型多層膜偏光子（あるいはフィルター）、磁気回路、サンプルホルダー、回転検光子ユニットから成る。Figure 4 に、UVSOR 施設 BL5B の分光器下流に設置した磁気カー回転測定装置の概略図を示す。磁気回路は4つのSm-Co系永久磁石から成り、サンプル位置での印加磁場は0.82 Tである。専用のサンプルホルダーと組み合わせることで、極カー配置、縦カー配置そしてファラデー配置で利用することができる。極カーおよび縦カー配置では、10~30°及び60~90°の入射角領域の光路が各々確保されており、またファラデー配置では、大気側からのサンプル交換ができるように磁気回路内でのサンプルホルダーの直線運動領域が確保されている。検出器は反射型多層膜偏光子（検光子）とMCPを搭載した回転検光子ユニットで、パルスモーターにより、検光子に対する入射角を一定にしたまま光軸の回りの回転運動が可能である。検光子ホルダーはウォームホイールに固定されており、ウォームにより各検光子の擬ブラスター角に合わせた入射角で検光子を保持できる。

ストレージリングの電子軌道面内の放射光を、分光器の上流側にある鉛直方向の可動スリットで切り出して分光器に入射させた。両測定での入射光の直線偏光度は、ビームラインの最下流で0.98以上である。なお、我々が開発した

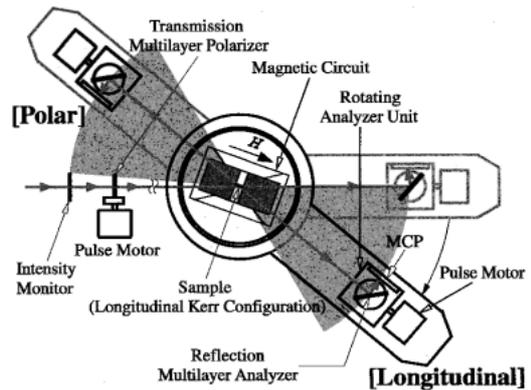


Figure 4. Schematic illustration of magnetic Kerr rotation apparatus. The gray sectoral regions indicate the measurable angular regions of the rotating analyzer unit in the polar and longitudinal Kerr rotation measurements.

フリースタンディング透過型多層膜偏光子を利用すると、放射光の光路を変えずに直線偏光度をさらに向上させることができる⁸⁾。

3.2 サンプル

極紫外領域では透明な物質は存在しない。一方、透過型の測定では、基板を含めたサンプルからの透過光が測定に耐えられるだけの十分な強度を持っていなければならない。したがって、基板として利用できる物質は、薄膜化可能な物質に制限され、同様にサンプル物質の合計厚さも制限を受ける。我々は、透過型サンプル用の基板として、銅メッシュで裏打ちされたコロジオン膜を作製し用いた。この基板の測定波長領域における透過率は35%以上である。反射型サンプルの基板はSiウエハーである。

Ni単層膜の透過型と反射型のサンプルは、マグネトロンスパッタ法により作製した。さらに、Co/Pt磁性多層膜の透過型サンプルをイオンビームスパッタ法により作製した。

3.3 測定信号の例と解析法

回転検光子法を用いた磁気旋光測定では、サンプルへの入射直線偏光とサンプルからの透過楕円偏光あるいは反射楕円偏光の状態を、検光子の方位角依存反射強度として測定する。そして、フィッティング解析により偏光楕円長軸方位角と楕円率（絶対値）を導出する。回転検光子ユニットを用いて実際に得られる測定信号（以降サインカーブと呼ぶ）の例として、Ni 31.5 nm サンプルのファラデー回転測定で得られた65 eVでの入射光（白抜き丸）および透過光（黒丸）のサインカーブをFig. 5に示す。横軸は多層膜検光子の方位角 ϕ_A （回転検光子ユニットの回転角）であり、縦軸はMCPが検出した多層膜検光子からの反射光強度信号からダーク信号を差し引いたものを入射光強度モニター信号で規格化して任意単位で表したものである。サインカーブは、 ϕ_A の関数として

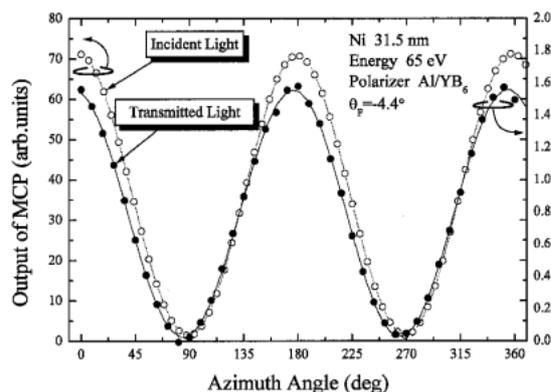


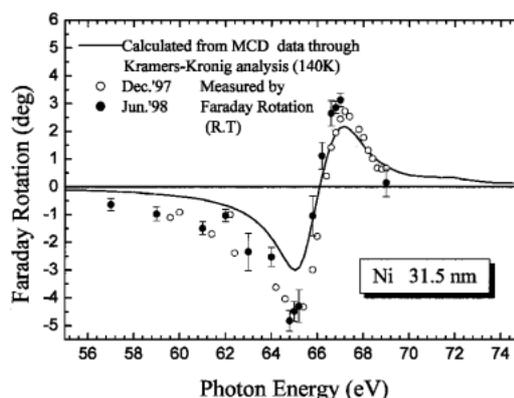
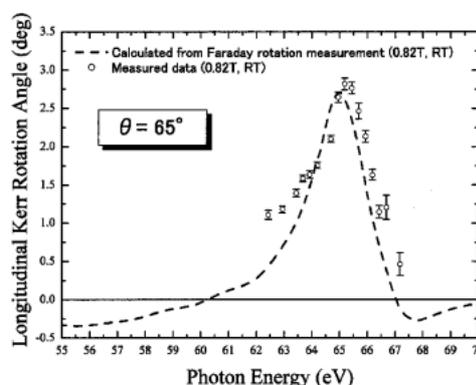
Figure 5. Example of signals from the rotating analyzer unit.

$$I(\phi_A) = I_0 [1 + P \cos \{2(\phi_A - \phi_0)\}] \quad (4)$$

のように表される。ここで、 I_0 は検出光の平均強度、 P は検出光の直線偏光度と多層膜検光子の偏光能の積、 ϕ_0 は偏光楕円長軸方位の初期方位角である。ところで、光軸と回転検光子の回転軸にわずかなずれがあると、方位を1回転したときに入射角が大きい方と小さい方にそれぞれ1回変動し、それが反射率の変動となってサインカーブの変形をひき起こす。実際のフィッティング解析では、この変形を修正するため、ずれに対応する $(1 + \delta_1 \cos \phi_A + \delta_2 \sin \phi_A)$ を式(4)に掛け合わせたものをフィッティング関数として用い、非線形フィッティング解析により I_0 , P , ϕ_0 を求める。Figure 5の破線と実線はそれぞれサンプルへの入射光とサンプルからの透過光のサインカーブに対しフィッティング解析を行った結果である。 ϕ_0 の差からファラデー回転角 -4.4° が得られている。

3.4 結果と考察 1. Ni 単層膜

Figure 6に、Ni 31.5 nm サンプルについて室温で測定した、 $M_{2,3}$ 吸収端近傍におけるファラデー回転角スペクトルを示す⁹⁾。白抜き丸と黒丸は、同一サンプルについて約半年の期間をおき2度の測定を行った結果である。両スペクトルから、サンプルの経時変化を示す顕著な差は認められない。スペクトル形状は、低エネルギー側の回転角が高エネルギー側よりも大きい非対称な分散型となっており、その極値は $M_{2,3}$ 吸収端から約1 eV低エネルギー側にずれている。Figure 6の実線は、以前報告されたNi $M_{2,3}$ 吸収端領域のMCDスペクトル¹⁰⁾からクラーメス・クローニヒ(KK)解析により見積ったファラデー回転角スペクトルである。このMCD測定は、物質構造科学研究所フォトンファクトリーのBL-28Aにおいて、サンプル温度140 K、印加磁場10.5 Tのもとで全電子収量法により測定されたものである。MCDスペクトルから見積ったNi 31.5 nmのファラデー回転角スペクトルは、実測スペクトルとおおよそ相似な形状となっているが、絶対値は小さい。磁化した物質の誘電率テンソルを磁化の大きさで展開

Figure 6. Faraday rotation angle spectra of Ni 31.5 nm thick film around Ni $M_{2,3}$ absorption edges.Figure 7. Longitudinal Kerr rotation angle spectra of Ni 98 nm thick film on Si wafer for s-polarized incident light around Ni $M_{2,3}$ absorption edges, at angle of incidence of $\theta = 65^\circ$.

すると、ファラデー回転角は磁化の大きさに比例する。ファラデー回転測定は室温で行われたのに対し、MCD測定は140 Kで行われており、またどちらの測定でも、Ni サンプルは磁化が十分飽和するだけの磁場が印加されていることから考えると、本来であればMCDスペクトルから見積ったファラデー回転角の絶対値が本実験の実測値よりも大きくなければならない。しかし、実際は逆の関係となっており、このことは両測定法の探査領域(厚さ方向)の違いによるものと考えられる。全電子収量法を用いたMCD測定は表面敏感であるから、バルクとは異なる表面あるいは表面汚染領域からの信号も測定しているであろう。一方、ファラデー回転測定は透過型であり、光が通過する全領域からの信号を得ている。バルク領域からの信号の割合の差がファラデー回転角の絶対値の差として現れたものと考えられる。

Figure 7に、98 nm厚のNi膜に対して入射角 65° で行った印加磁場0.82 T、室温下での縦カー回転角スペクトル測定および計算の比較を示す¹¹⁾。白抜き丸が実測値であり、破線はファラデー回転角スペクトルの実測値から見積った計算値を示している。Figure 7に見られるよう

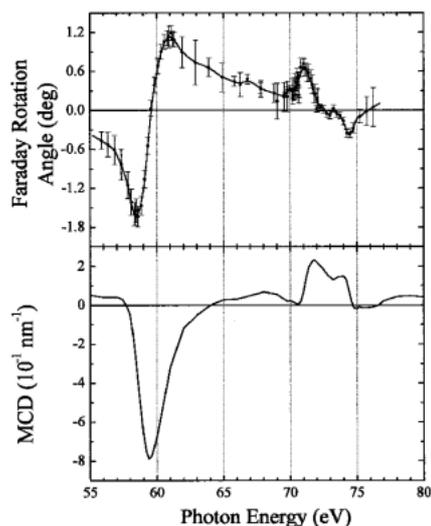


Figure 8. Faraday rotation and calculated MCD spectra of [Co (2.2 nm)/Pt (1.38 nm)]₅ multilayer in the 55–80 eV region.

に、両者はほぼ一致している。

3.5 結果と考察 2. Co/Pt 磁性多層膜

Figure 8 に、Co/Pt 磁性多層膜の Co の $M_{2,3}$ および Pt の $N_{6,7}$ 吸収端を含む 55～80 eV 領域でのファラデー回転角スペクトルとこれから KK 解析により求めた MCD スペクトルの例を示す。Co の $M_{2,3}$ 吸収端だけでなく Pt の $N_{6,7}$ 吸収端でも明瞭な偏光面の回転が観測されており、これまでの MCD による同系についての測定¹²⁾と同様に、非磁性である Pt 原子にも磁気モーメントが誘起されていることがファラデー回転測定により確認された。

4. おわりに

本稿では極紫外多層膜偏光子の製作法を述べ、さらにこれを用いて開発した、強度測定法とは別の磁気分光法であ

る磁気旋光分光の有用性を示した。すなわち、ファラデー回転測定は、表面敏感である全電子収量法を用いた MCD 測定より、バルク感性を持つことが分った。また、磁気カー回転と、ファラデー回転の測定結果が矛盾しないことを確認した。そして、Co/Pt 磁性多層膜のファラデー回転測定より、多元素系の研究へ磁気旋光分光が十分適用できることを示した。本稿で示したように、多層膜を用いると性能の良い偏光子ができるので、今後多くのビームラインで容易に磁気旋光分光の研究が行えるであろう。

現在我々は、磁気カー回転測定を磁性多層膜評価に応用する試みを始めている。これが実用可能となれば、薄膜化が困難な系に対しても磁気旋光測定が適用可能になるだけでなく、入射角を変えることにより、表面からの探査領域を変えて磁化の測定が実現できるものと考えている。

参考文献

- 1) 安居院あかね他：放射光 第14巻第5号, 339 (2001).
- 2) J. B. Kortright, M. Rice and R. Carr: Phys. Rev. **B51**, 10240 (1995).
- 3) S. P. Collins: J. Phys. Condens. Matter **11**, 1159 (1999).
- 4) H.-Ch. Mertins and F. Schäfers: Phys. Rev. **B61**, 874 (2000).
- 5) M. Yamamoto and T. Namioka: Appl. Opt. **31**, 1622 (1992).
- 6) T. Hatano et al.: Proc. of 13th Intl. Conf. on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics (Trieste, 2001), Surface Rev. & Lett. (2002) to be published.
- 7) <http://www-cxro.lbl.gov/opticalconstants/>.
- 8) W. Hu, T. Hatano, M. Yamamoto and M. Watanabe: J. Synch. Rad. **5**, 732 (1998).
- 9) T. Hatano, W. Hu, K. Saito and M. Watanabe: J. Electr. Spectr. Rel. Phenom. **101-103**, 287 (1999).
- 10) T. Hatano, S. Y. Park, T. Hanyu and T. Miyahara: J. Electr. Spectr. Rel. Phenom. **78**, 217 (1996).
- 11) K. Satio et al.: Proc. of 13th Intl. Conf. on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics (Trieste, 2001), Surface Rev. & Lett. (2002) to be published.
- 12) N. Nakajima et al.: Phys. Rev. Lett. **81**, 5229 (1998).