



Title	光電子顕微鏡による磁区観察と超薄膜磁性研究
Author(s)	今田, 真
Citation	大阪大学低温センターだより. 2002, 118, p. 7-13
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/11615">https://hdl.handle.net/11094/11615</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

# 光電子顕微鏡による磁区観察と超薄膜磁性研究

基礎工学研究科 今 田 真 (内線6421)

E-mail: imada@mp.es.osaka-u.ac.jp

## 1. はじめに

物質の磁気は、身近なところでは電車の切符や銀行のキャッシュカード、パソコンのハードディスクなどに情報を記録するのに応用されている。音楽用のミニディスク (MD) も、読み出しにはレーザーを使っているが、記録には磁気を使っていて、磁気によって反射光の偏光が変化する現象 (磁気光学効果) を用いて情報を読み取っている。これらの磁気記録では、情報は微小領域の磁化方向 (すなわちN極やS極の向き) の形で記録されていて、どれだけ記録密度を上げられるかは、どれだけ高い空間分解能で磁化させたり磁化方向を読み出せるかにかかっている。

では、磁気記録に実用化できるかどうかを別にして、磁化方向の分布 (磁区構造) はどの程度の空間分解能で測定できるであろうか。最高分解能はスピン分解STMで、原子分解能すなわち原子1個1個の磁化方向を知ることができ、たとえば反強磁性スピン配列を観測することに成功している。しかし、原子分解能のスピン分解STMはきわめて高度な技術を必要とし、筆者の理解では成功しているのは世界中で1グループのみである。その次ということになると、いずれも10 nm オーダーの空間分解能をもつ手法がいくつかある<sup>[1]</sup>。今回はそのなかでX線磁気円二色性 (XMCD) 顕微分光を、われわれがドイツの研究グループと共同でSPring-8で行った研究を例にとりて紹介したい。

この研究のターゲットは、大きさが $\mu\text{m}$  オーダーの磁性マイクロ構造や、10原子層程度の非常に薄い薄膜や多層膜である。低温センターだよりの昨年10月号の「鉄も超伝導に」では「鉄が高圧下では本来のbcc構造ではなくhcp構造をとり、強磁性でなくなって超伝導も示す」ことが紹介されていた。われわれの研究では「超薄膜」という高圧下とは対照的な環境を用いているが、やはり鉄が強磁性でなくなる薄膜成長条件がみつかっていて、それを積極的に利用した研究も行った。

## 2. 実験開始まで

発端は、我々 (菅グループ) とドイツのMax-Planck研究所微細構造物理研究部門のJ. Kirschnerグループが共同して、SPring-8で何か研究をしようという日独協力を1997年度に立ち上げたことであった。研究計画を立てた当時はSPring-8のビームラインは建設途中で、所期の性能が出る保証もなかったが、この時期を逃すとSPring-8を使うメリットが薄れるということで、筆者からみればやや強引に話がまとまった。

当初から目論まれていたのは、光電子顕微鏡 (Photoelectron emission microscope = PEEM) を使おう

ということであった。PEEMは図1に示すような装置で、試料に光が入射した際に試料から出てくる電子（光電子や2次電子）を拡大収束することで、試料上からの放出電子の強度分布を得ることができる。一般的な最高分解能は20 nmで、1997年当時からすでに注目され始めていた「ナノ」の研究手段として魅力的であった。

PEEMを用いて得られる情報は、入射光と試料の組み合わせによってさまざまである。SPring-8でわれわれが立ち上げに参加していたビームラインは、約200 eVから約1800 eVの軟X線領域で円偏光を発生することができる。

強磁性体による円偏光軟X線の吸収強度は、磁化方向と円偏光の光スピンの向きが同じ向きか逆向きかで異なる。これを軟X線磁気円二色性（soft X-ray magnetic circular dichroism: XMCD）と呼ぶ（XMCDの原理については文献<sup>[2]</sup>などを参照していただきたい）。XMCDの特徴は、内殻電子の励起に伴う元素固有の吸収線を用いるので、元素選択的なことである。XMCDは例えばFeにおいては2p軌道から磁気モーメントを担う3d軌道への電子遷移に伴う光吸収（2p XAS）において顕著に見られ、そのスペクトルは3d軌道のスピンおよび軌道状態を反映したものになる。

われわれが行ったのは、このXMCDの空間分布を測定するために、PEEMを用いることである。すなわち、物質が軟X線を吸収すると、励起状態が緩和する過程で多数の2次電子を放出する。この2次電子の強度分布をPEEMを用いて観測することで、試料表面における光吸収強度分布を測定することができる。したがって、円偏光軟X線とPEEMを組み合わせることで、XMCDの空間分布を測定することができる。

さて、実験は1998年秋から1999年春にかけて行われた。PEEM本体はもとより、測定や試料準備を行う真空装置全体と制御電源一式が、ベルリンのKirschnerグループの研究室からSPring-8まで輸送されてきた。一辺1.5mはあろうかという木箱が2つ届いたときには圧倒されて途方にくれたが、立ち上げ中のビームラインに新しい装置を設置するには、まず配電盤から装置に分電する簡易配電盤のようなものを作る電気工事から始めなくてはならなかった。これにはスタッフと留学生を含む学生さんが大勢狩り出されたが、最近の基礎工学研究科の改修に伴う装置の移転の丁度いいリハーサルだったかもしれない。ドイツからは3人が1.5ヶ月程度ずつ2度にわたってやってきた。彼らはとてもパワフルかつ手際よく装置の組み上げから超高真空バークを行い、実験初日には光を装置に通してから数時間で最初のPEEM画像を得ることに成功していた。

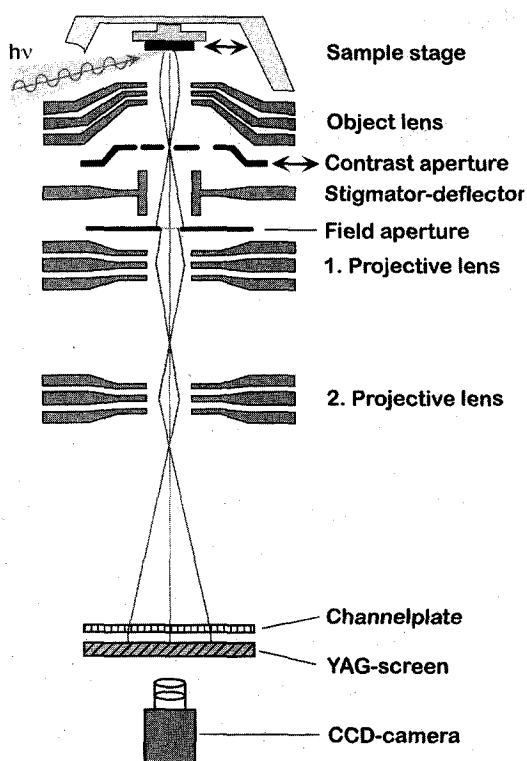


図1 光電子顕微鏡（PEEM）の概略図

### 3. 磁区構造の観察

今回の共同研究の成果は主に3報の論文<sup>[3-5]</sup>にまとめられた。詳しくはこれらの論文かほかのところに出した日本語の報告<sup>[6]</sup>をご参照いただくことにして、ここではそれぞれを簡単に紹介する。

最初に紹介するのは、磁区構造の観察である<sup>[3]</sup>。パルス磁場による磁区構造の変化を調べる目的で、Si基板上に電子線リソグラフィとリフトオフ法で多結晶Co薄膜(30 nm厚)の長方形を作製した。なお、試料作製は、電子光科学分野の蒲生グループの柳沢先生と木村崇さんに行っていた。長方形の2辺はいずれも0.5~32  $\mu\text{m}$ まで2倍のステップで変化させた。図2(a)が2辺が2~8  $\mu\text{m}$ の長方形について得られた磁気コントラストである。この磁気コントラストは、Coの2p軌道から3d軌道への光吸収ピークのエネルギーを持つ円偏光を試料に入射してPEEM像を測定することで得られた。円偏光は図の右下の矢印の方向に、試料面と30°の角度で入射させ、 $L_x$ ,  $L_y$ は長方形のx, y方向それぞれの長さを表す。最も明るい(暗い)部分が光の入射方向と同じ(逆)向きすなわち上(下)向きに磁化している磁区である。中間の明るさの部分はほぼ横向きに磁化しているので、磁区構造の並び方から右あるいは左向きと推定できる。

次にこれらのミクロ構造にパルス磁場を印加した。パルス磁場の強度は36 Oeから始めて18 Oeずつ大きくしていったパルス磁場印加直後にゼロ磁場で磁区構造を観察した。例として図2(b)に $L_x \times L_y = 2 \times 8$ および $4 \times 8$   $\mu\text{m}^2$ のパルス磁場による変化を示す。2  $\times$  8  $\mu\text{m}^2$ の長方形は108 Oeのパルス磁化で下向きにほぼ飽和した状態から上向きにほぼ飽和した状態に変化した。一方、4  $\times$  8  $\mu\text{m}^2$ の長方形では54 Oeのパルス磁場で下向きにほぼ飽和磁化した状態から上下に渦状の磁区の有る状態に、続いて108 Oeのパルス磁場で上向きにほぼ飽和磁化した状態に変化した。

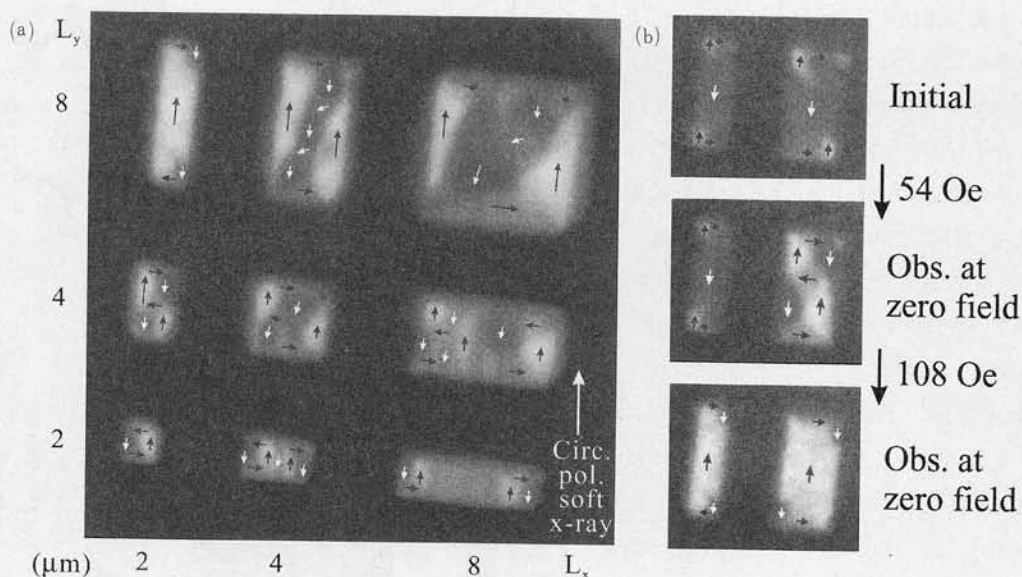


図2 30 nm厚Co薄膜微小構造の磁区構造(a)と磁化反転過程(b)。(b)ではパルス磁場をかけた後ゼロ磁場中で測定している。

#### 4. 非強磁性 Fe を介した強磁性膜間の交換結合振動

Fe はバルクでは bcc 構造をとるが、たとえば fcc 構造をとる Cu の (001) 面上に成長させると、十数層の膜厚までは fcc 構造をとる。とくに、特定の膜厚領域では fcc-Fe は表面または界面のみが強磁性で膜内部は非強磁性となる。さて、非強磁性膜を間に挟んだ強磁性膜同士の磁氣的結合は、非強磁性膜の膜厚に依存して、強磁性的・反強磁性的と振動的に変化する現象（交換結合振動）が知られている。われわれは上記の内部が非強磁性の fcc-Fe を 2 層の強磁性膜の間に挟んだときにも、交換結合振動が見られる可能性があると考え、その検証のために Ni/Fe/Co の 3 層膜の XMCD-PEEM を行った<sup>[4]</sup>。

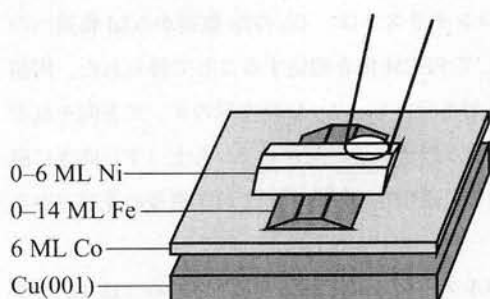


図3 2重楔形構造 Ni/Fe/Co 3層膜

任意の膜厚の時の状態を一度に知ることができる。

中間 Fe 層の磁気モーメントを定量的に見積もるために、XMCD の磁気光学総和則を用いた。このためには光吸収ピークにおいて PEEM 像を撮るだけでは不十分である。すなわち、円偏光の極性を設定して Fe 2p XAS 領域全体にわたる 121 点の光エネルギーにおいて PEEM 像を測定した後、極性の反転を行って同様の測定を繰り返した。測定に要した時間は、分光器駆動や偏光反転の時間を含めて 1 時間 15 分であった。この測定によって PEEM の CCD カメラの各ピクセルにおいて図 4 (a), (c), (e) のように 2 本の XAS スペクトル（実線が正のヘリシティ、破線が負のヘリシティの円偏光によるスペクトル）が得られる。この 2 本の差分である MCD スペクトル（図 4 (b), (d), (f)）を磁気光学総和則を用いて解析することによって、この領域の Fe 3d 電子のスピンの磁気モーメント ( $\mu_S$ ) と軌道磁気モーメント ( $\mu_L$ ) を求めた（図上段の値）。ここでスピン（軌

道）膜厚依存性を測定するもっとも効率的な方法は楔形に膜厚を連続変化させて顕微分光を行うことである。まず、Cu (001) 上に fcc-Co を蒸着し、その上にアパチャーを通してかつ試料+アパチャーの角度を前後に揺らしながら Fe を楔形に蒸着、同様にして Ni を直交した向きの楔形に蒸着した。こうして図 3 のような 2 重楔形構造が得られ、XMCD 顕微分光で観測することで Fe と Co が（この範囲内で）

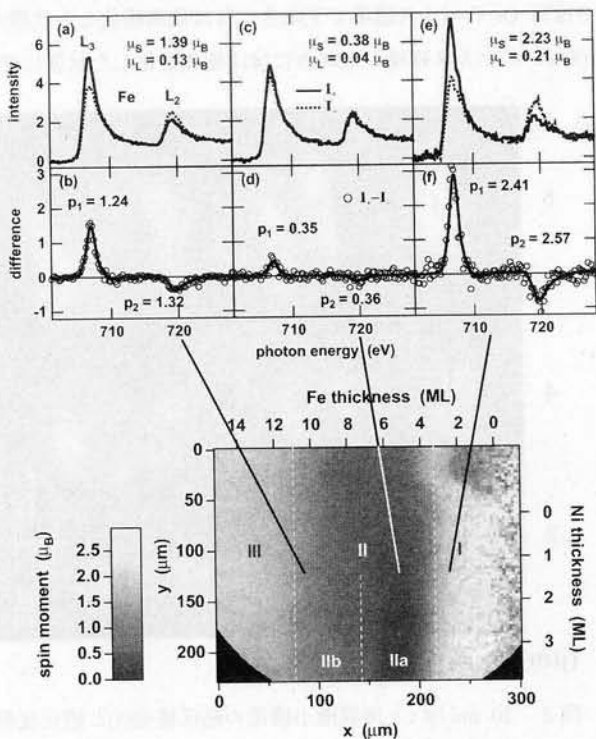


図4 2重楔形 Ni/Fe/Co 3層膜のいくつかの点での XMCD スペクトルとスピン磁気モーメントの分布

道) 磁気モーメントとは磁気モーメントのうち電子のスピン (軌道角運動量) による寄与のことである。

このようにして7,600組の XMCD スペクトルの解析から求めた Fe 3d スピン磁気モーメントの分布が Fig. 4(b)である。x-y 座標は試料上の位置を表し、副尺に示すように x 方向に Fe 膜厚が、y 方向に Ni 膜厚が変化している。Fe スピンモーメントの大きさは Fe 膜厚に強く依存しており、これは Fe/Cu(001) における Fe 膜厚依存性とよく似ている。すなわち、領域Ⅰでは膜全体が強磁性のひずんだ fcc 的構造、領域Ⅱでは表面または界面のみ強磁性で内部は非強磁性のひずんだ fcc 的構造 (領域Ⅰとはひずみ方が異なる)、領域Ⅲでは膜全体が強磁性の bcc 構造になっている。さて、Fe 膜厚5.5ML 付近の Ni 膜厚1.5ML 以上の領域Ⅱa では、Fe スピン磁気モーメントが顕著に減少していることがわかる。

では、Fe 層を挟む Co, Ni 層はどうなっているであろうか。図 5(a), (b)に Co, Ni の  $2p_{3/2}$  ピーク強度の円偏光反転時の非対称性の分布を示す。これらはそれぞれ定性的に Co および Ni の 3d スピン磁気モーメントの分布を反映していると考えてよい。下地の Co 層においては領域Ⅱa も含むほぼ全領域にわたってほぼ一定の正の値を取っている。こ

れに対し、Ni 層は領域Ⅱa で負、それ以外ではほぼ一定の正の値となっている。従って Co 層と Ni 層は領域Ⅱa では反強磁性的に、それ以外では強磁性的に結合している。

Co-Ni 層間の反強磁性結合の起源は、領域Ⅱでは Fe 層内部が非強磁性であることと関連があると考えられる。すなわちこの非強磁性層を挟んだ Co 層と Ni 層の間に振動的交換結合が働いたために、領域Ⅱa で反強磁性的に、Ⅱb で強磁性的に結合したと解釈される。「振動」の2度目が見えていないが、これは相当する Fe 膜厚では Fe 層全体が強磁性 bcc 層に転移しているためと考えられる。これを検証するために、製膜時条件を変えて fcc-bcc 転移を起こす膜厚をより大きくした試料について調べたところ、2度目の反強磁性結合による Ni モーメントの変化が観測された。

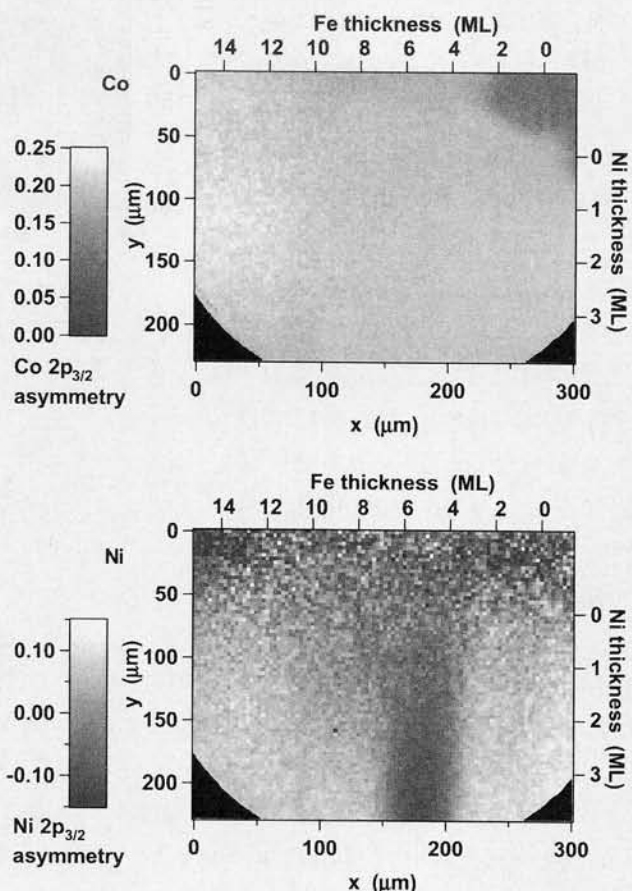


図5 2重楔形 Ni/Fe/Co 3層膜の Ni および Co 層の XMCD 強度分布



## 5. 容易磁化方向転移と磁気異方性エネルギー

Ni 薄膜上に Co を蒸着した際に見られる磁化容易方向転移のメカニズムを探るために、2 重楔形 2 層膜 Co/Ni/Cu (001) について円偏光励起の顕微分光を行った<sup>[5]</sup>。試料は Cu (001) 上に 0~14 ML の Ni と 0~4 ML の Co を直交した楔形状にエピタキシャルに成長させたものである。この試料は、作成中やその後に磁化は行わなかった。

4 節と同様に各ピクセルの Ni 2p-3d MCD スペクトルの解析から求めた Ni 3d スピンモーメント  $\mu_s$  の分布が図 6 である。中央付近の斜めの白点線の上下でコントラストが定性的に異なっており、上部では 4 段階、下部では 2 段階のコントラストが見られる。ここで示されているのは、スピンモーメントの光の入射方向 (図の下から上の向きで試料表面から  $30^\circ$  の角度) の成分である。Ni が面内方向に磁化する場合、磁化容易方向は  $[110]$  方向と等価な 4 方向が考えられる。従って、上部の 4 段階のコントラストは図に示す 4 方向の面内磁化に相当する。一方下部の 2 段階のコントラストは面直磁化で試料面に対して手前向きか奥向きかの 2 方向に相当する。以上より、この膜厚領域で元来面直磁化する Ni 層が Co 層を上から蒸着することで面内磁化に転移し、磁化容易方向転移は Ni と Co 両方の膜厚に依存することが分る。

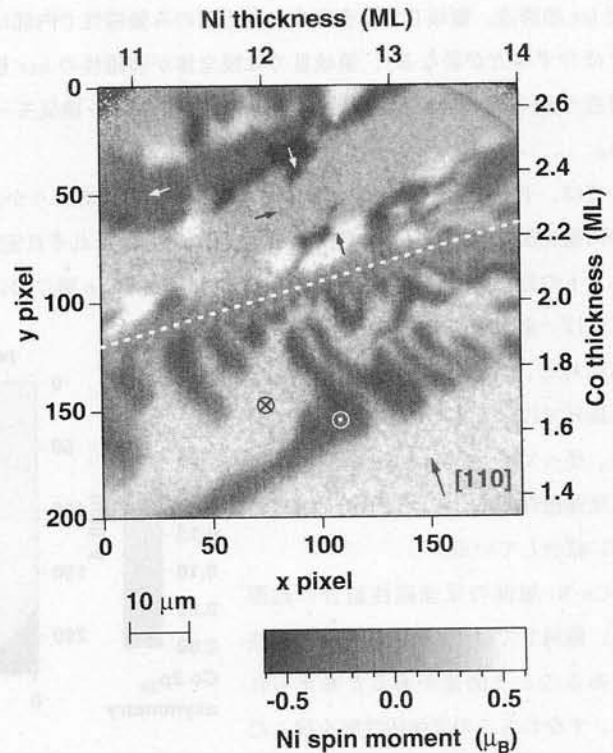


図 6 2 重楔形 2 層膜 Co/Ni における Ni 3d スピン磁気モーメントの分布

次に、Ni の軌道モーメント  $\mu_L$  (磁気モーメントに対する電子の軌道角運動量の寄与) の分布を見積もった。 $\mu_s$  の大きさは磁化容易方向転移を境にほとんど変化せず  $0.65 \mu_B$  なのに対し、 $\mu_L$  は面内磁化相で  $0.05 \mu_B$ 、垂直磁化相で  $0.08 \mu_B$  と優位な変化を示していた。

ここで見られた磁化容易方向転移の起源は Co, Ni 膜の磁気異方性エネルギーの競合と考えることができる。異方性エネルギーはスピン軌道相互作用によっているので、これは  $\Delta \mu_L$  に比例すると考えられる。上記の  $\mu_L$ ,  $\mu_s$  の値を用いると Ni 一原子当りの異方性エネルギーは  $50 \sim 90 \mu\text{eV}$  と見積もられた。

## 6. おわりに

SPring-8 のビームラインが立ち上げ中ということもあって多少不安を残してスタートした日独共同研究だったが、実験開始前の苦勞の甲斐あって、終わってみればいい成果が出ていたように思う。今後、

ナノテクノロジーの研究がますます盛んになる中、磁性ナノ構造は間違いなく重要な位置を占め続けると予想されるので、このような研究はこれからもぜひ続けていきたいと考えている。

時々、「放射光を用いなくて実験室で（じっくり腰を落ち着けて）磁区構造を元素選択的に見られる手法はないですか」と尋ねられることがある。PEEMの入射光の代わりにスピン偏極低速電子源を用いれば、放射光を用いなくても磁区構造を見ることができる（spin polarized low energy electron microscopy: SPLEEM）。この手法は元素選択性を持たないが、工夫すればもしかすると元素選択性を持たせることも可能かもしれない気もしている。

本研究は基礎工学研究科物性物理科学分野の菅グループとドイツ Max-Planck 研究所微細構造物理研究部門の J. Kirschner グループの共同研究で、日本学術振興会と DFG の日独共同研究として支援された。また文部科学省科学研究費 COE 予算（10CE2004）での支援も受けたことを記し謝意を表したい。

## 参考文献

- [1] A. Hubert and R. Schäfer: *Magnetic Domains* (Springer, Berlin, 1998).
- [2] 今田真, 菅滋正, 宮原恒晃: 日本物理学会誌 **55**, 20 (2000).
- [3] S. Imada, S. Ueda, R. Jung, Y. Saitoh, M. Kotsugi, W. Kuch, J. Gilles S. S. Kang, F. Offi, J. Kirschner, H. Daimon, T. Kimura, J. Yanagisawa, K. Gamo, and S. Suga: Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L585 (2000).
- [4] W. Kuch, J. Gilles S. S. Kang, F. Offi, S. Imada, S. Suga, and J. Kirschner: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., **109**, 249 (2000).
- [5] W. Kuch, J. Gilles S. S. Kang, S. Imada, S. Suga, and J. Kirschner: Phys. Rev. B, **62**, 3824 (2000).
- [6] 今田真: 日本応用磁気学会誌, **25**, 1252 (2001).