

メゾスコピック磁性体の磁区構造観察

小野寛太¹、尾嶋正治²、秋永広幸³、Ernst Bauer⁴

¹ 高エネルギー加速器研究機構、² 東京大学大学院工学系研究科、³ 産業技術総合研究所、⁴ アリゾナ州立大学

Magnetic imaging of mesoscopic magnets

Kanta ONO¹, Masaharu OSHIMA², Hiroyuki AKINAGA³, Ernst BAUER⁴

¹ Institute of Materials Structure Sciences, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

² Department of Applied Chemistry, The University of Tokyo

³ Nanotechnology Research Institute, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

⁴ Arizona State University

1. はじめに

ハードディスクをはじめとする超高密度磁気記録デバイスは近年急激な発展を遂げており、1ビットあたりの記録エリアはすでにナノスケール領域に突入している。メゾスコピック磁性体の磁区構造や磁化反転過程などの振る舞いは、いわゆるバルクの磁性とは全く異なっており、材料の特性の他に磁性体のサイズ・形状が重要な役割を果たしている。例えば、メゾスコピック磁性ディスクでは中心部に vortex を持つような磁区構造を取ることが知られている。また、磁化反転過程もバルク磁性体のような磁壁の移動により説明されるのではなく、vortex の生成・移動・消滅により説明される。このようなメゾスコピック磁性体の磁区構造を直接観察することは、基礎研究の観点のみならず、超高密度記録媒体の開発という産業界に直接関連した応用研究の観点からもきわめて重要である。

一方、放射光を用いた評価技術も近年めざましく進展し、ナノ材料開発において放射光を用いた評価・計測技術が注目を集めている、中でも放射光光電子顕微鏡は、近年のナノテクノロジーの進展とも相まって、新しい微小領域観察手法の中で有力な評価技術として注目を集めている [1,2]。放射光を用いた顕微分析手法の大きな強みは、放射光を用いた分析・分光と実空間でのイメージングという2つの異なる手法が融合され、顕微分光という新しい材料評価技術のパラダイムを提供するところである。特に放射光光電子顕微鏡は放射光の持つ輝度、偏光性、エネルギー可変性を最大限に利用することによって、メゾスコピック磁性体の磁気イメージングを定量的に行うことが出来る手法である。本稿では、我々が最近取り組んでいる放射光光電子顕微鏡を用いたメゾスコピック磁性体の磁区構造観察について簡単に解説する。

一般的な磁区構造観察の手段として、現在最もポピュラーに用いられている手法は磁気力顕微鏡 (MFM: Magnetic Force Microscope) である。磁気力顕微鏡は磁性体探針と試料との間に働く磁気力 (磁気的な相互作用によって働く力) を検出し、磁気力の実空間イメージングを行う手法であるが、磁気力の大きさは試料からの漏れ磁界の二次微分に比例し、磁気力像から実際の磁区構造を描くことは一般に困難である。その他にも、最近では Spin-SEM や走査型 SQUID 顕微鏡などの新しい磁区構造観察手法が注目を集

めている [3]。

一方、放射光光電子顕微鏡による磁区構造観察が最近盛んに行われるようになってきた。放射光を用いた光電子顕微鏡による磁区構造観察の利点を簡単にまとめると以下のようなことがあげられる。

1. 元素選択的な磁気モーメントのイメージングが可能。例えば、薄膜が多層になった構造をしている場合でも、光のエネルギーを各元素の吸収端に合わせることで、元素選択的なイメージングを行うことができる。
2. 磁気光学総和則を用いることにより、磁気モーメントにおけるスピン成分と軌道成分の寄与を分離し、かつ定量的に求めることが出来る。
3. 直線偏光を用いることにより、反強磁性体の磁区構造を直接観察することができる。
4. リアルタイム (ビデオレート) で磁区の動きを観察することができる。
5. 非破壊測定が可能である。イメージングを行う際に磁気的な相互作用を利用しないため、測定により磁区構造を変えてしまうことがない。

という点が挙げられる。一方、大きなデメリットとしては、磁場印加中での測定が難しいことが挙げられる。これは、磁場印加中では光電子の軌道が磁場によって曲げられ、結像することが出来なくなるからである。そのため通常の方法で磁場を印加することは出来ず、試料に磁束を閉じこめ、磁束が外に漏れないような工夫をする必要がある。この観点ではわれわれはナノ加工技術を用いて、磁場印可回路を試料と同一の基板上に形成する手法の開発を進めている。

光電子顕微鏡を用いて磁区観察をする場合、X線磁気円二色性で最もコントラストが強く出るのは軟X線領域 (数 100 ~ 1,000 eV) であるため、軟X線領域の円偏光を用いるのが一般的である。軟X線領域の円偏光は放射光以外の光源で得ることは現状では極めて困難であり、このため軟X線領域の円偏光を使うには放射光を用いることが必要不可欠である。

2. 実験方法

光電子顕微鏡では、試料に励起光を照射したとき光電効

果によって試料から放出される光電子（二次電子）を加速した後、静電レンズなどによって拡大し、場合によってはエネルギー分析を行い、マルチチャンネルプレート (MCP) 上へ結像させ、MCP で増幅して蛍光スクリーン上へ光電子像を映し出す。蛍光スクリーン上の光電子像は低速スキャン CCD カメラなどで取り込み、コンピュータへ転送して画像処理を行う。

放射光を励起光として用いた場合、特定の元素の吸収端のエネルギーに光のエネルギーを合わせることが出来る。一般に二次電子の放出強度はその光のエネルギーでの光吸収の強度に比例することが知られているため、光電子の像の強度は観察している局所的な場所での光吸収強度に比例していると考えられる。このため、特定の元素の吸収端で観察を行うことにより、元素選択的なイメージ（化学イメージ）を得ることが出来る。

また、円偏光を用いることにより、X線磁気円二色性 (XMCD) を利用して、化学イメージングと併せて、強磁性体について元素識別した磁気コントラストを得ることが出来る [4,5]。このため強磁性体の磁区構造を直接観察することが可能となる。XMCD においては、円偏光を試料に照射したときの光の進行方向に対して磁化の向きが平行か反平行かで吸収強度が異なる。このため、円偏光軟X線を照射して光電子像を観察することによって、コントラストの違いから磁化の向きを知ることが出来、磁区構造を得ることが出来るのである。ただし、XMCD の大きさは通常の光吸収に比べてあまり大きいものではない（数%程度）ために、より明瞭な磁気コントラストを得るには画像処理を行う必要がある。また小さい磁気コントラストを明瞭に観察するには、装置固有の誤差（視野中での放射光の強度ムラ、MCP、CCD カメラの感度ムラなど）や試料の表面の凹凸などのトポグラフィックな効果による影響を出来る限り取り除く必要がある。そこで左円偏光と右円偏光でそれぞれ光電子像を取り込み、像の差分や、割り算を行うなどの画像処理を行うことによって明瞭な磁気コントラストを得る手法が用いられている。

XMCD においては磁気光学総和則と呼ばれる法則が知られており、磁気光学総和則を適用することによって磁気モーメントを定量的に見積もることが出来るとともに、スピン成分と軌道成分とに分離することが出来る。磁気光学総和則の詳細については他の文献を参照されたい [6,7]。光電子顕微鏡で得られた像に磁気光学総和則を適用するには、吸収端近傍で光のエネルギーを変えながら、左右円偏光についてそれぞれ光電子像を取り込み、局所的なX線吸収スペクトル（光電子像の各ピクセル強度の光エネルギー依存性）に対して、磁気光学総和則を適用する必要がある。このようにすることによってスピン磁気モーメント・軌道磁気モーメントの空間マッピングが可能となる。軌道磁気モーメントの空間的なマッピングを直接行うことが出来る手法は極めて限られているため、磁気異方性など軌道磁気モーメントが重要な役割を担う現象の理解には、放射光光電子顕微鏡による観察が非常に有効となる。しかしながら

この手法はまだ適用例が限られており、今後の発展が期待される。

詳しい説明は省くが、放射光光電子顕微鏡に特徴的なこととして、直線偏光を利用することによる反強磁性体の磁区観察があげられる。

さらに光電子顕微鏡の大きな特徴として空間分解能が高いことが挙げられる。現在、放射光光電子顕微鏡においては空間分解能 15 nm が得られており、今後さらにエネルギーフィルターの利用で色収差を減少させ、コンピュータ画像処理による球面収差補正技術の進展などにより空間分解能はもう 1 桁ぐらいいよくなり、近い将来には数 nm に達することが期待される。

3. 実験例

以下、われわれが行った実際の実験例を示す。メゾスコピック磁性体では、ディスク構造などにおいて vortex を持つことが知られており、vortex のトポロジー（カイラリティ、ポラリゼーション）を直接観察することが極めて重要である。ポラリゼーションについては観察・制御が可能であることが示されている [8]。しかしながらカイラリティについてはローレンツ電子顕微鏡などにより観察した例があるもののほとんど研究が行われていないのが現状である。われわれはこのようなメゾスコピック磁性体の vortex のカイラリティ制御を目指し、研究を進めている。

われわれが放射光光電子顕微鏡を用いて行ったメゾスコピック磁性体はシリコン基板上に 100 nm の厚さの金薄膜を蒸着し、さらに 50 nm の厚さのパーマロイ ($\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ 合金) 薄膜を真空蒸着したものをナノ加工して作製した。パーマロイ薄膜は集束イオンビーム (FIB) を用いてナノ加工した。実験はイタリアのトリエステにある放射光施設 Elettra の可変偏光アンジュレータビームライン Nanospectroscopy beamline で行った。用いた放射光光電子顕微鏡は SPELEEM (Spectroscopic Low-energy Electron Emission Microscopy) と呼ばれ、現在世界最高分解能 (15nm) を誇る装置である。実験の詳細な条件については論文を参照されたい [9]。

放射光光電子顕微鏡による観察は Fe の L 吸収端で行った。3d 遷移金属の L 吸収端では、2p 軌道の大きなスピン・軌道分裂と 3d バンドの大きな交換分裂により大きな XMCD が観測される。磁気コントラストは L 吸収端で左右円偏光それぞれの光電子顕微鏡像を取り込み、2つの画像の差分を取ることで得た。こうすることにより、前述したように磁気コントラストが強調されるだけでなく、装置の誤差や表面モフォロジーの情報を除去することも出来る。このようにして得られた磁気コントラスト像の強度は、磁気モーメントの光の入射方向への射影成分に比例したものである。

Fig. 1 に放射光光電子顕微鏡により得られたパーマロイの正方形構造の磁気コントラスト像を示す。得られた像の視野は 25 ミクロンである。円偏光放射光の入射方向はこの図の左側から右側の方向である。磁気コントラストの中

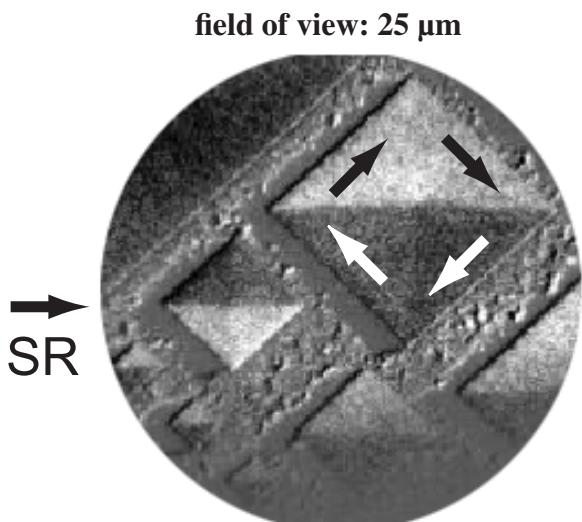


Figure 1 PEEM image of mesoscopic square structures of permalloy with a field of view of 25 μm . Synchrotron radiation illuminates along diagonal to the squares.

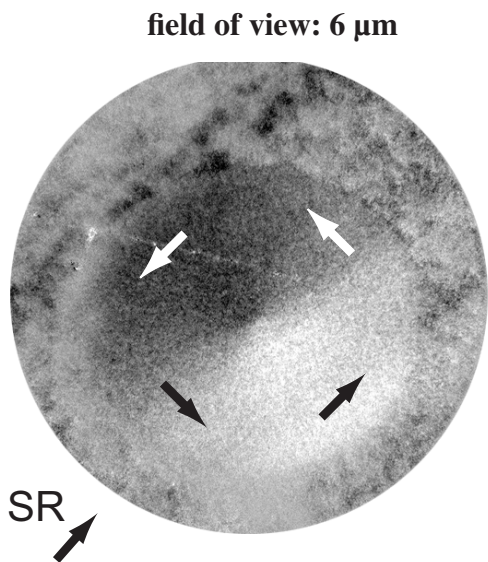


Figure 3 PEEM image of a mesoscopic disk structures of permalloy with a field of view of 6 μm .

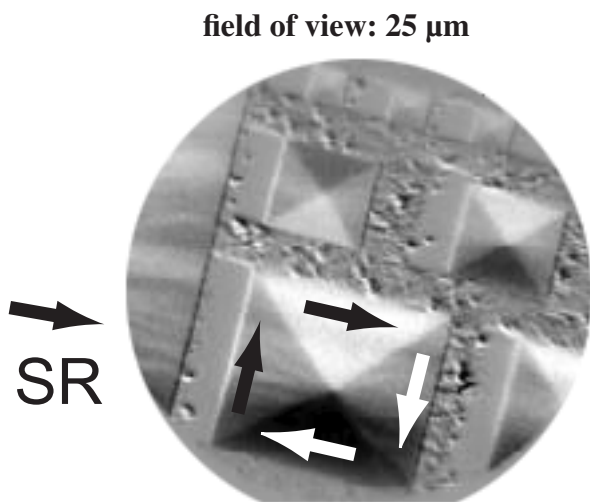


Figure 2 PEEM image of mesoscopic square structures of permalloy with a field of view of 25 μm . Synchrotron radiation illuminates along parallel to the edge of squares.

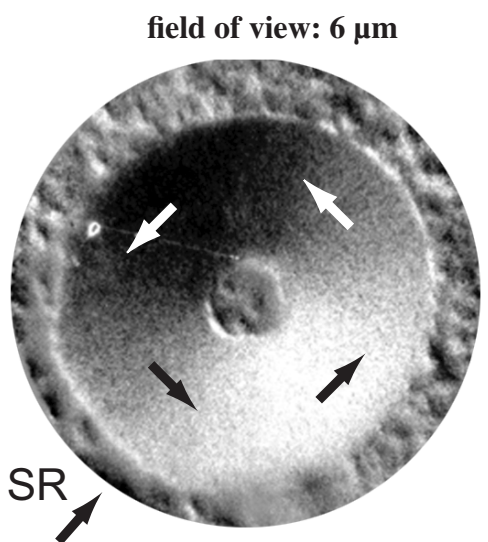


Figure 4 PEEM image of a mesoscopic ring structures of permalloy with a field of view of 6 μm .

で明るい部分と暗い部分はそれぞれ光の入射方向に平行、反平行に磁化した磁区へ対応している。このように正方形の対角線方向に光を入射する配置では図に示した矢印のように、それぞれ右上向きと右下向きは同じコントラスト、左上向き、左下向きは同じコントラストを取るため、結果として上半分と下半分の二つに分かれたようなコントラストが得られることが分かる。

次に、試料を 45 度回転し、正方形の辺の方向へ光を入射したときの磁気コントラスト像を Fig. 2 に示す。この場合、グレーの部分は光の入射方向と垂直方向へ磁化した磁区に対応している。このように Fig. 2 では明るい部分（正方形の上側で対角線で囲まれた三角形の部分）、暗い部分（下側）、グレーの部分（左右）が明瞭に観察されており、磁区が正方形の中でループになっており、閉じた磁区構造（Flux Closure Domain）を形成していることが分かる。これらの結果はマイクロ磁気シミュレーションの結果と一致

した。
次に Fig. 3 では、円形構造の磁気コントラストを示す。コントラストが次第に変化していくことから閉じた構造を形成していることが分かった。円形構造の中心部分には vortex が観測されることが、新庄らにより明らかにされている [8]。今回の観察でこの vortex のカイラリティが反時計回りであることが分かった。このように放射光光電子顕微鏡を用いることにより、メゾスコピック磁性体の vortex のカイラリティが直接観察できることが明らかになった。

最後に、リング構造の磁気構造について述べる。観測された磁区構造 (Fig. 4) は円形と同様に閉じた磁区構造を取っている。また、この場合も面内での磁束の回転方向をはっきりと観察することが出来た。

4. まとめ

放射光光電子顕微鏡を用いて、メゾスコピック磁性体の

カイラリティを直接観察できた。次のステップとして、われわれはカイラリティの制御およびカイラリティ制御を利用した磁気デバイスの開発を行っていく予定である。

5. 今後の展開

以上、放射光光電子顕微鏡を用いたメゾスコピック磁性体の磁区構造観察について簡単に述べた。現在、PFにおいてコンパクトな放射光光電子顕微鏡の立ち上げを東京大学、産業技術総合研究所とともに進めており、すでに放射光を用いた像が得られている。Fig. 5にAR NE-1Bに設置した放射光光電子顕微鏡の写真を示す。今後はPFでメゾスコピック磁性体、ナノ磁性体の磁気イメージングを行いたいと考えている。

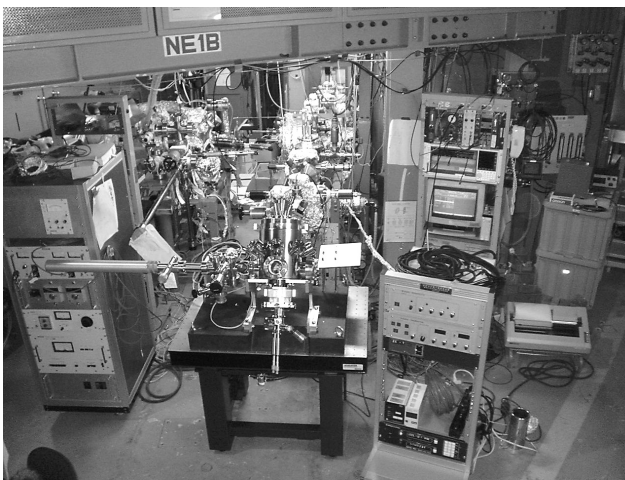


Figure 5 Newly built "mobile PEEM" at the AR-NE1B of the Photon Factory.

謝辞

本研究におけるパーマロイ薄膜の作製は、産総研の眞砂卓史研究員によって行われました。イタリア Elettra における実験では Dr. Stefan Heun、Dr. Andrea Locatelli、Dr. Salia Cherifi、Dr. Anastasia Pavlovska に大変お世話になりました。感謝いたします。また本研究の一部は、ナノテクノロジープログラムの一環として、NEDO の委託により実施されています。

参考文献

- [1] J. Stöhr, Y. Wu, B. D. Hermsmeier, M. G. Samant, G. R. Harp, S. Koranda, D. Dunham, and B. P. Tonner, *Science* **259**, 658 (1993).
- [2] F. Nolting, A. Scholl, J. Stöhr, J. W. Seo, J. Fompeyrine, H. Siegwart, J.-P. Locquet, S. Anders, J. Lüning, E. E. Fullerton, M. F. Toney, M. R. Scheinfein, and H. A. Padmore, *Nature* **405**, 767 (2000).
- [3] T. Fukumura, M. Ohtani, M. Kawasaki, Y. Okimoto, T. Kageyama, T. Koida, T. Hasegawa, Y. Tokura, and H. Koinuma, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3426 (2000).
- [4] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller,

R. Frahm, and G. Materlik, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 737 (1987).

- [5] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti, *Phys. Rev.* **B42**, 7262 (1990).
- [6] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1943 (1992)
- [7] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli, and X. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 694 (1993).
- [8] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, and T. Ono, *Science* **289**, 930 (2000).
- [9] A. Locatelli, S. Cherifi, S. Heun, M. Marsi, K. Ono, A. Pavlovska, E. Bauer, *Surf. Rev. Lett.* **9**, 171 (2002).

著者紹介

小野寛太 Kanta ONO

略歴：平成 8 年東京大学大学院理学系研究科博士課程修了、同年東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻助手、平成 14 年 11 月より高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所助教授。

専門：放射光固体物性、ナノ磁性（博士（理学））

尾嶋正治 Masaharu OSHIMA

略歴：1974 年東京大学大学院工学系研究科合成化学専攻修士課程修了、同年 日本電信電話公社（現 NTT）電気通信研究所入社、1981-82 年 Stanford 大学電気工学科客員研究員、1987 年 NTT 研究所放射光研究グループリーダー、1995 年東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻教授、1999 年 KEK 物質構造科学研究所客員教授。

専門：放射光利用表面物性（工博）

秋永広幸 Hiroyuki AKINAGA

略歴：平成 4 年筑波大学工学研究科博士課程修了、平成 5 年アトムテクノロジー研究体：産業技術融合領域研究所、平成 13 年産業技術総合研究所：ナノテクノロジー研究部門、現在に至る。この間平成 9 年ベルギー IMEC 客員研究員。

専門：スピントロニクス（工博）

Ernst Bauer（エルンスト バウアー）

略歴：アリゾナ州立大学教授

専門：表面物性、光電子顕微鏡、低速電子顕微鏡