

紫外光を使った 磁気顕微鏡 の開発

横山 利彦

物質分子科学研究領域
電子構造研究部門 教授

(併)分子スケールナノサイエンスセンター



よこやま・としひこ

1960年大阪生まれ。1985年に東京大学大学院理学系研究科修士課程を修了、1987年に同博士課程を中退後、広島大学助手、東京大学助手、同講師・助教授を経て、2002年1月より分子科学研究所教授に着任、現在に至る。2007年4月より分子スケールナノサイエンスセンター長併任。理学博士。研究テーマは、磁性薄膜の表面科学的分光学的研究。着任来5年半、いまだに電美宿舎に住む。休日は息子と宿舎駐車場よくキャッチボールする姿が目撃される。

磁気顕微鏡

コンピュータ記憶素子は年々高密度化高速化され続け、既に1個のトランジスタの大きさは100 nm (1 nmは10億分の1メートル) を切り、1回の演算時間は0.1 ns (1 nsは10億分の1秒) に達している。次世代の有力な記憶素子として開発中の磁気メモリMRAM (Magnetoresistive Random Access Memory) は、強磁性の薄膜2枚を非磁性膜で挟んだ構造をとり、2枚の磁石が同じか逆向きかで異なる電気抵抗を示すことをビットとして利用するものであるが、今までにないようなナノサイズの小さい磁石の向きをナノ秒以下で素速くスイッチするためには、実用開発のみならず基礎物理学的な性質をもっと理解する必要がある。そのためには高速磁気顕微鏡の開発がまずは不可欠であろう。

磁性薄膜用の磁気顕微鏡で最も広く使われているものは、たぶん磁気力顕微鏡 (MFM, Magnetic Force Microscopy) である。これは、絶縁体表面のナノ構造を観測するための手段である原子間力顕微鏡と同じようなもので、検知針を磁石にして試料と針の間に働く磁気力を計測し、検知針を走査することでイメージングするものである。現在の技術で空間分解能は十分100 nmを切るが、針が磁石なので試料の磁化を変えてしまう危険性がある。また、針を走査して像を得るため、観測したい範囲全部の測定にはそれなりの時間がかかり、リアルタイムイメージング (通常1枚1/30 s露光で連続測定) は原理的に不可能だし、空間のある1点の高速測定も困難極まる。一方、全く別の手法として、X線を用いた磁気円二色性 (MCD, Magnetic Circular Dichroism) 効果を光電子顕

微鏡 (PEEM, PhotoEmission Electron Microscopy) によりイメージングする方法がある。この方法は測定したい磁性元素に固有の波長のX線を試料に照射し、放出される光電子が空間的にどこから飛び出したかをPEEMを使って調べるものである。X線は円偏光を用いて左巻きと右巻き円偏光X線による信号強度の差 (円二色性) を観測する。試料磁化とX線進行方向のなす角や試料磁化の大きさによりMCD強度が変化し、磁気イメージングが可能となる。この方法は、MFMと比べて試料への影響が少なく、空間分布が走査なしに測定できるので放射光のパルス幅100 ps (1 psは1兆分の1秒) 程度的高速観測も可能である。ただ、大強度で波長可変のX線源を利用するので、第3世代シンクロトロン放射光といった巨大加速器を要するという不便性が残る。

横山Gでは助教の中川剛志が中心となって、X線ではなく紫外 (UV) 光を用いた超高速MCD PEEM装置を開発している。これまでUV光を用いたMCDはX線に比べて感度が2桁程度低く実用に耐えないとされてきたが、我々はUV光でも光子エネルギーを最適化することで著しく感度が向上できることを発見した[1]。さらにこれに基づいて開発研究を進め、静的な顕微像の測定に成功し[2]、現状ではリアルタイム測定も概ねできるようになった。UV光はX線と違って市販のレーザーが利用できる、巨大設備が不要である上、放射光X線の時間分解能100 psをはるかに上回る超高速測定 (例えば100 fs、1 fsは1000兆分の1秒) が可能である。全く前人未踏の領域であるが、すでに京大に転出された松本吉泰教授とレーザーセンターの渡邊一也助教との共同で、超高速紫外磁気円二色性光電子顕

微鏡の開発を進めている。ここではその開発現状をお知らせする。

巨大可視紫外光電子磁気円二色性効果の発見

この研究での最も重要な成果は、UV光でも光子エネルギーを最適化することで、著しくMCD感度が高くなることを発見したことであろう。まずこれを紹介する。試料は主としてCu(001)単結晶に成長させたエピタキシャルNi超薄膜を用いた。エピタキシャルとは基板と薄膜の結晶成長方向が一意的に整合している（ランダムでない）という意味である。Niの仕事関数 Φ は5.3 eV程度であり、光電子を放出させる（光電効果）には、光エネルギー $h\nu$ を5.3 eV以上にする必要がある。残念ながら、波長可変の深紫外レーザーは高価で手持ちがなかったので、アルカリ金属のCsを被覆することで仕事関数の方を下げ、光電子を観測した。この場合、Cs被覆により試料Ni薄膜の状態が変化しないという仮定が入る。

図1 (a) に、Cs被覆12原子層 (ML) Niの光電子MCDによる磁化曲線と、通常の磁気光学Kerr効果 (MOKE、

Magneto-Optical Kerr Effect) による磁化曲線を示した。光電子MCDによる磁化曲線が美しく測定できている。縦軸はMCD感度であるが、その大きさは5%程度にも達している。図1 (a) ではMOKEの縦軸を記載していないが、感度としては2桁程度もの向上になっている。一方、図1 (b) はMCD信号の円偏光依存性である。 $\lambda/4$ 波長板の方位角依存性から、左円偏光 (0°) で極大、右円偏光 (90°) で極小、直線

偏光 ($45^\circ, 135^\circ$) で0であり、確かにMCDを観測していることが確認できた。

続いて、この2桁もの感度向上の理由を探るため、エネルギー依存性を測定した。ここでも仕事関数 Φ を変化させる (Cs被覆量を変える) ことでMCD強度の変化を調べた。その結果を図2に示した。2つのレーザー ($h\nu = 1.95, 3.81$ eV) のいずれも仕事関数しきい値近傍 ($h\nu - \Phi \approx 0$) でMCD感度

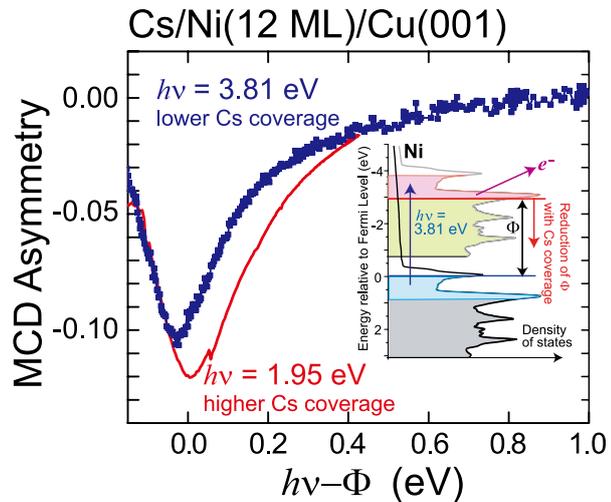


図2 Cs被覆Ni(12 ML)/Cu(001)のMCD強度の $h\nu - \Phi$ 依存性。挿入図は光電子の励起概念図。レーザーは半導体レーザー (1.95 eV) とHeCdレーザー (3.81 eV) を用いた。

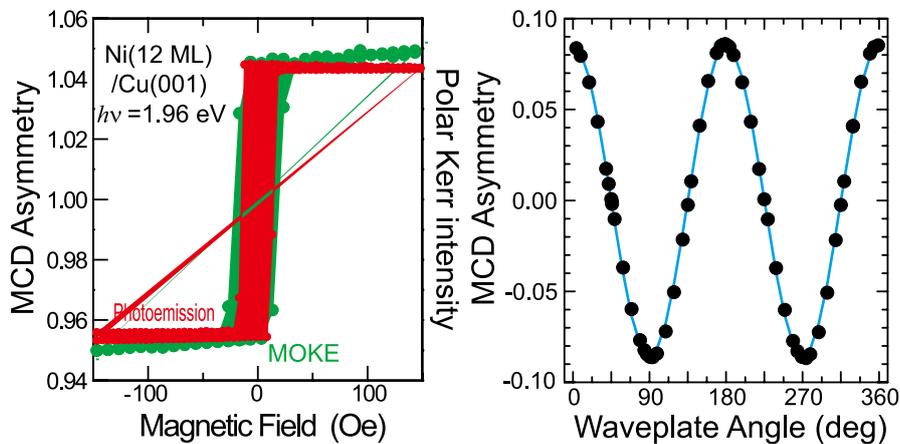


図1 (a) Cs被覆Ni(12 ML)/Cu(001)の光電子MCD (赤) とMOKE (緑) による磁化曲線。(b) 同じ試料の光電子MCDの $\lambda/4$ 波長板方位角依存の偏光依存性。

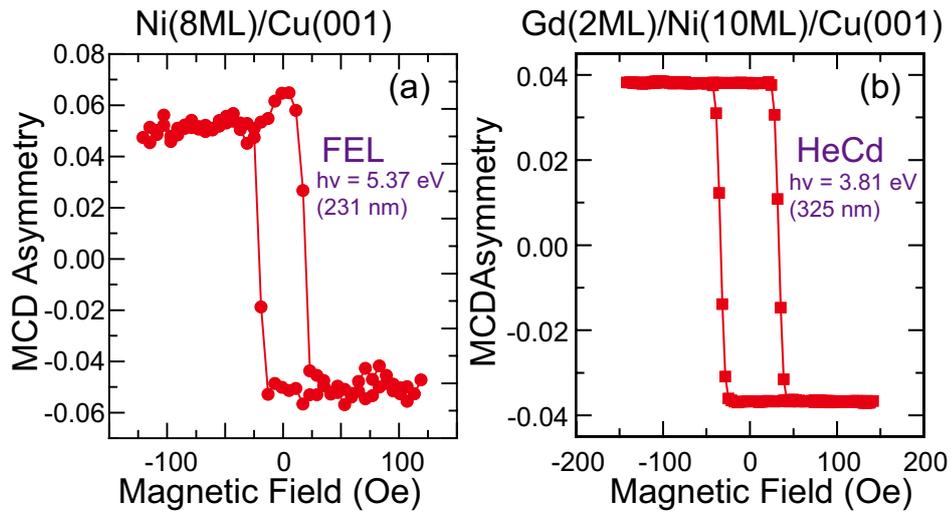


図3 (a) UVSOR-II FELによる清浄Ni/Cu(001)薄膜と(b) HeCdレーザーによるGd被覆Ni/Cu(001)薄膜の光電子MCD磁化曲線。

が極端に(負に)大きくなり(-10%以上)、エネルギーのずれとともに急激に0に減衰することがわかった。

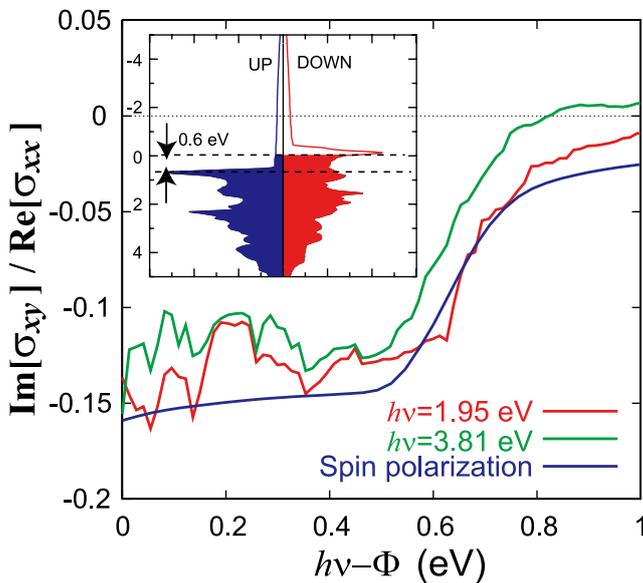
以上の実験は、Cs被覆試料の結果である。次に、この現象がCsによる状態変化ではないことを示すため、より短波長の紫外レーザーを用いて、Cs被覆していない試料で実験を行った。図3にUVSOR-IIの自由電子レーザー(FEL, Free Electron Laser)を光源とした清浄なNi薄膜ならびにHeCdレーザーを用いたGd被覆Ni薄膜の光電子MCD磁化曲線を示した。いずれも光エネルギーは仕事関数にはほぼ等しい条件になっている。やはり $\pm 4 \sim 5\%$ という非

常に強いMCDが観測され、Csによる何らかの異常効果ではないことが示された。なお、FELの実験はUVSOR加藤政博教授・保坂将人助手(現名大院工准教授)との共同研究である。

また、バルクNiについて、スピン軌道相互作用を含む簡単なバンド計算を行った。図4に、計算によって求められた伝導度テンソル非対角項(MCDに対応)の $h\nu-\Phi$ 依存性を示した。確かにしきい値付近($0 \sim 0.5 \text{ eV}$)で負に大きく、それ以上のエネルギーで急激に0に減衰しており、実験データを定性的に再現できている。図にはスピン偏極度も示したが、MCDとよく対応していることがわかる。Fermiレベル近傍の準位ではスピン軌道相互作用が大きくは変わらず、主にスピン偏極の高さを反映した磁気円二色性を呈示しているようである。

なお、Ni/Cu(001)以外でも、Co, Fe薄膜について同様の検討を行い、いずれも仕事関数しきい値近傍でMOKEと比べて2桁程度の感度向上が確認できた。ある程度一般的に、UV光電子MCDでも紫外光の波長を選べばX線に匹敵する感度で観測できると結論した。

図4 バルクNiにおける伝導度テンソル非対角項(MCDに対応)の計算値(赤と緑)。スピン偏極度も併せて示した(青)。挿入部はスピン偏極状態密度。



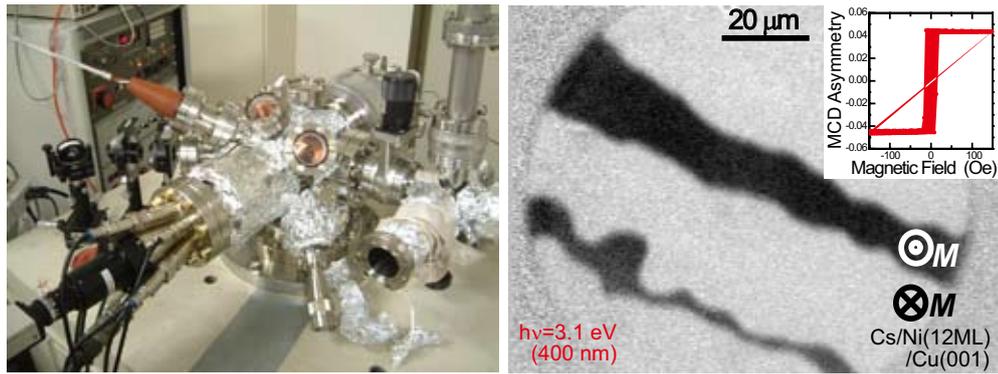


図5 (左) 光電子顕微鏡測定システム。(右) Ti:Sapphireレーザー倍波 (3.10 eV) を用いたCs被覆Ni(8 ML)/Cu(001) 薄膜のMCD PEEM像 (視野100 $\mu\text{m}\phi$)。暗部は磁化Mが上向き、明部はMが下向き。挿入図は別途測定した磁化曲線。

紫外磁気円二色性 光電子顕微鏡像の観測

次に光電子顕微鏡像の観測を試みた。なんとか家計をやり繰りしてElmitec社製PEEM Spectorを購入し(図5左)、同じくCu(001)基板上のCs被覆Ni垂直磁化膜の静的なPEEM像を観測した。光源は研究室所有のHeCdレーザーやTi:Sapphireレーザー(2倍波3.10 eV)を用いた。図5右では、はっきりと2種の磁区(暗部と明部)が観測されている。厚い膜のUV磁気線二色性(MLD)PEEMは報告がある[G.K.L.Marx et al. *Phys.Rev.Lett.* **84**(2000)5888]ものの、UV MCD PEEMの実測は世界初であり、しかも12 MLという超薄膜にもかかわらず十分な感度で観測できている。図は左右円偏光に対してそれぞれ4秒積算した差分であるが、ビデオレート(1/30秒)の積算でも十分像が観測できた。大強度レーザーゆえ、放射光利用X線MCD PEEMに比べて強度的にも勝っている

と考える。さらには、Ti:Sapphireレーザー基本波(1.55 eV)を用いた二光子磁気円二色性光電子顕微鏡像の観測にも成功しており、これも世界初観測である。また、さしあたりの目標をフェムト秒超高速UV MCD PEEM観測に置き、元松本Gの渡邊一也氏に教わりながらポンププローブシステムを組み上げ、すでに予備的なデータを得つつある状況である。

ただし、図5や現状のPEEM観測はすべてCs被覆薄膜を利用しておりまだ実用的ではない。しかし、UVSOR-II FELの実験からわかるように、波長可変深紫外レーザーがあれば測定可能になる。幸い、本年度から3年間にわたって科学研究費補助金基盤研究(A)が採択されたので、波長可変高出力Ti:Sapphireレーザーと4倍波発生器を購入した。夏以降に着任予定の新助教も含めて、実用的なリアルタイムとポンププローブ超高速測定が可能な波長可変深紫外レーザー磁気円二色性光電

子顕微鏡を早期に完成させ、成果が挙がることを期待している。

本研究は主として助教中川剛志の行った研究成果である。UVSOR-II FELの実験は加藤政博教授と保坂将人助手(当時、現名大院工准教授)との共同研究であり、UVSORスタッフの方々に大変お世話になった。また、進行中の超高速PEEM観測は松本吉泰教授(現京大院理)と渡邊一也助教と共同で行っている。さらに、着任以来、毎年、中村現所長と茅前所長から特別研究費をいただいていた。この場を借りて皆様に厚く感謝の意を表したい。また、科研費特定領域「分子スピン」(平成15~18年度、領域代表:阿波賀邦夫名大院理教授)の計画研究、科研費基盤研究(A)(平成15~17年度)からの補助金も本研究遂行に大変役に立ったことを付記しておく。

参考文献

- [1] T. Nakagawa and T. Yokoyama, *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006) 237402.
 [2] T. Nakagawa, T. Yokoyama, M. Hosaka and M. Katoh, *Rev. Sci. Instrum.* **78** (2007) 023907.