

円偏光放射光を用いた光電子顕微鏡 (PEEM) による磁性マイクロ構造の研究

今田 真¹, 菅 滋正^{1,2}, W. KUCH², J. KIRSCHNER²

¹大阪大学大学院基礎工学研究科*

²Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik

Magnetic Microstructures Studied by Combining Circularly Polarized Synchrotron Radiation and Photoelectron Emission Microscope (PEEM)

Shin IMADA¹, Shigemasa SUGA¹, W. KUCH² and J. KRISCHNER²

¹Graduate School of Engineering Science, Osaka University

²Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik

Until two decades ago, magnetic materials were only known to the public as permanent magnet and magnetic tape. Now, they are being used not only in personal hard disks and mini-disks but also in memories in next-generation computers. Further development of the information technology will need further increase in the storage density and density of circuits in such devices. It will hence become more and more necessary to be able to 'see' magnetic microstructures. The spin of electrons can be detected by using circularly polarized light. Recently, element-specific microscopic study of magnetic microstructures has become possible by the combination of photoelectron emission microscopy (PEEM) and magnetic circular dichroism in soft x-ray photoabsorption. In our study in SPring-8, we investigated the magnetization processes of magnetic microstructures and the interlayer exchange coupling in epitaxial magnetic multilayers. We review this study and future prospects.

1. はじめに

磁性マイクロ構造のイメージングに対するニーズは、基礎研究としてのみならず、ハードディスクやミニディスク(MD)に代表される高密度記録媒体や、電子のスピン自由度まで利用する全く新しいデバイスの開発といった応用研究の観点からも急速に高まっている。このような研究で求められることは、磁区構造(試料の部分部分が違う向きの磁石になっている様子)を高い空間分解能で明らかにすることにとどまらない。ハードディスクの記録容量を上げるための記録媒体や読み取りヘッドの開発を例にとってみよう。記録媒体としては、膜面に平行ではなく、膜面に垂直に磁化する(磁極が膜の上面と下面にある状態)素材が注目されている。どちら向きに磁化しやすいか(容易磁化方向)を制御するには、素材を選ぶことで、磁力の起源である電子のスピン(自転に相当)と軌道角運動量(公転)が磁力を担う割合を調節する必要がある。従って、電子の

スピンや軌道角運動量の状態を顕微鏡的に明らかにする手法が必要である。一方、次世代のハードディスク読み取り機構として注目されているトンネル磁気抵抗(TMR)素子は、2枚の強磁性薄膜の間に非磁性絶縁体膜を挟んだ構造をしており、磁性膜同士が磁化の向きが同じか逆かでトンネル抵抗が変わる現象を利用している。この時、磁性膜同士の磁氣的結合を制御することが重要になるが、そのためには各層の素材や厚さを変えたときに、各層の電子状態がどのように変化するかを解明する必要がある。

このような電子の磁氣的な状態を明らかにする手法として、10年ほど前から注目されているものに、円偏光の軟X線を利用した内殻光吸収(XAS)の磁気円二色性(MCD)がある¹⁻³⁾。この手法を顕微鏡的手法と組み合わせたのが、XAS-MCD顕微分光であり、磁性マイクロ構造の磁区構造のみならず、電子の磁氣的状態までを顕微鏡的に明らかにすることができる。この手法の強力なメリット

* 大阪大学大学院基礎工学研究科 〒560-8531 豊中市待兼山町 1-3
TEL: 06-6850-6421 FAX: 06-6845-4632 E-mail: imada@mp.es.osaka-u.ac.jp

の一つは、内殻光吸収を利用しているため、特定の元素の情報を選択的に取り出せることである。これを利用すれば、たとえば複数の素材を用いた多層膜やヘテロ構造において、各素材ごとの情報を分離することができる。

XAS-MCD 顕微分光は、現在世界各国で競って開発が進んでいるが、二通りの手法が主流となっている。一つは、透過光をゾーンプレートでスクリーン上に結像する手法である⁴⁾。もう一つは、イメージング型の光電子顕微鏡 (PEEM) を用いる手法である^{5,6)}。光電子顕微鏡としてはほかに、光をマイクロ領域に絞って試料を掃引して光電子スペクトルをとる走査型光電子顕微鏡 (SPEM) もよく行われている。円偏光を用いて SPEM を行うと、光電子の MCD の顕微分光が行える。

本稿では、これらの手法のうち XAS-MCD, なかでも PEEM を用いた手法に焦点を当てる。2章で手法について解説したあと、それ以降の章では、SPring-8 を利用して我々が行った日独共同研究の例を紹介する。3章では磁性体マイクロ構造の磁区構造の研究を、また、4章では単結晶磁性多層膜の磁気状態の膜厚依存性や磁性膜間の磁気的結合の研究を紹介する。

2. XAS-MCD 顕微分光法

光子はスピンを持っており、スピンの向きは光の進行方向を向いている (光スピン $\mu=+1$) か逆向き ($\mu=-1$) かの2つの状態がある。特定のスピンを持つ光子のみの集まりが円偏光である。一点に止まって電磁場の時間的な回転を見たとき、光の進行方向に z 軸の正の向きをとった右手系の直交座標系で、 x 軸から y 軸の向きに電磁場回転している光が $\mu=+1$ 、逆向きのものが $\mu=-1$ に対応している。内殻光吸収の磁気円二色性 (XAS-MCD) は、磁性原子に円偏光軟 X 線を入射したとき、XAS 強度 (I) がその原子の磁気モーメントの光スピン方向成分 ($M_{//}$) に一次関数的に依存する現象である (Fig. 1)。従って、試料上での I の分布を顕微鏡的に測定する手法 (XAS 顕微分光) があれば、 $M_{//}$ の分布を知ることができる。これが最も簡単な XAS-MCD 顕微分光の説明である。以下、2.1節で XAS 顕微分光の2通りの手法について、つづいて、2.2節で XAS-MCD の原理について述べる。さらに2.3節と2.4節で SPring-8 で行った XAS-MCD 顕微分光のセットアップについて述べる。

2.1 XAS 顕微分光—透過法と PEEM 法

透過法による XAS 顕微分光では、一般の光学顕微鏡と同様に、試料を透過した光を集光することで、スクリーン上に試料の像を得る。光学顕微鏡と異なるのは、Fig. 2(a)のように、軟 X 線の集光のためにフレネルゾーンプレートを用いることである。得られた像の暗い部分が、透過光強度が弱い部分すなわち光吸収強度の強い部分に相当する。透過法を用いる際の制約は、軟 X 線が物質に非常

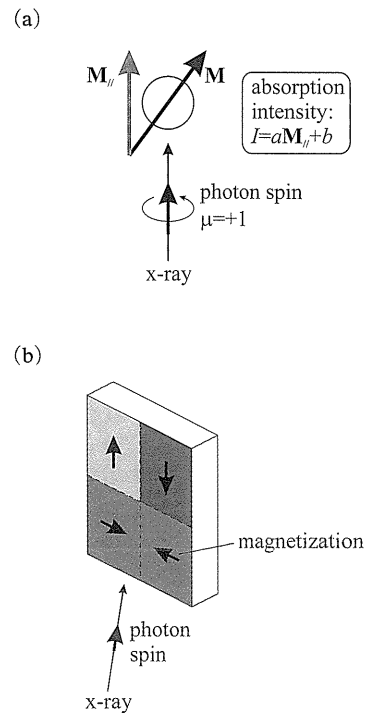


Figure 1. (a) A schematic view of circularly polarized soft x-ray and an atom with a magnetic moment. Absorption intensity of the x-ray by the atom depends linearly upon the projection of the magnetic moment on the photon spin. (b) An example of the distribution of the photoabsorption due to a magnetization domain structure.

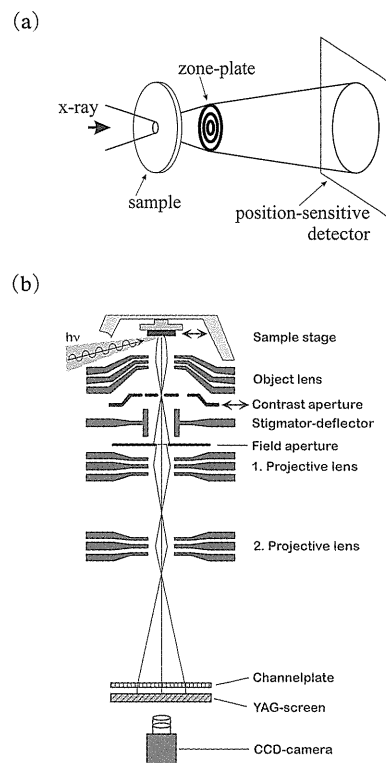


Figure 2. Methods for XAS-MCD microscopy. (a) In the zone-plate method, the x-ray transmits through a sample and is projected in an enlarged scale by a zone plate. (b) In the PEEM method, secondary electrons are projected by electron lenses.

に吸収されやすいために、試料を薄くしなくてはならない点である。従って蒸着膜を測定したいときも、Siや金属の単結晶基板のような分厚いものを用いることはできず、非常に薄い有機膜などの上に蒸着しなければならない。

分厚い試料の測定を可能にするのが光電子顕微鏡 (PEEM) である。試料上で光が吸収されると、試料表面から低エネルギーの二次電子が放出される。光吸収強度は二次電子の強度に比例するので、二次電子強度の分布を測定すれば XAS 顕微分光を行うことができる。PEEM は、Fig. 2(b) のように、試料から放出された電子を電子レンズを用いて蛍光スクリーン上に拡大投影することで、試料表面の光電子強度分布の顕微鏡像を得るものである。これはちょうど一般の電子顕微鏡から、電子を試料に入射させる部分を取り除いたようなものである。PEEM 法では、透過法と逆に、得られた像の明るい部分が光電子強度が強い即ち光吸収強度の強い部分に対応する。PEEM の空間分解能は最高で 15 nm 以下と報告されており、最近では、さらに進んで光電子のエネルギー分解とイメージングとを両立させた画期的な PEEM も開発されている。

透過法、PEEM 法いずれにおいても、高い空間分解能を得るには試料上での光密度を高くすることが不可欠である。そのためには、試料の直前に大きな縮小倍率を持つウォルターミラーや KB ミラーといった前置集光系を置くことが効果的である。一方、フレネルゾーンプレートは集光と分光の両方の機能を持っているので、分光器兼前置集光系としても用いられている。

2.2 XAS-MCD の原理

XAS-MCD は、例えば Fe や Co、Ni の 2p 軌道→3d 軌道の電子遷移に伴う光吸収 (2p XAS) でとても顕著である。また、Nd-Fe-B 永久磁石中の Nd のような希土類元素でも、3d→4f 遷移による 3d XAS が顕著な MCD を示す。一方、元来非磁性の元素も、強磁性物質中では電子状態がスピン偏極していて、CoS₂ の S の 2p XAS、La_{1-x}Sr_xMnO₃ 中の O 1s XAS などで MCD が観測されている。顕微分光の立場からも、これらの非磁性元素の MCD が今後重要な役割を果たすことは十分予想される。

さて、磁性元素の XAS-MCD はどのようにして起こるのであろうか³⁾。Fe の 2p XAS を例に見てみよう。Figure 3(a) のように、半分 (領域 I) は上向きに、もう半分 (領域 II) は下向きに磁化した Fe の膜に、表面すれすれの角度で下から上向きに $\mu=+1$ の光スピンを持つ円偏光を入射したとする。簡単のため光と膜面のなす角は 0° とすると、光スピンは I の部分の磁化と平行、II の磁化と反平行である。なお、上向き磁化は上が N 極、下が S 極の磁石になっている状態である。

Fe の 2p 軌道は大きなスピン軌道相互作用を持っているため、スピンと軌道角運動量が同じ向き (電子の自転と公転の回転方向が同じ) のときと逆向きのときとで大きく

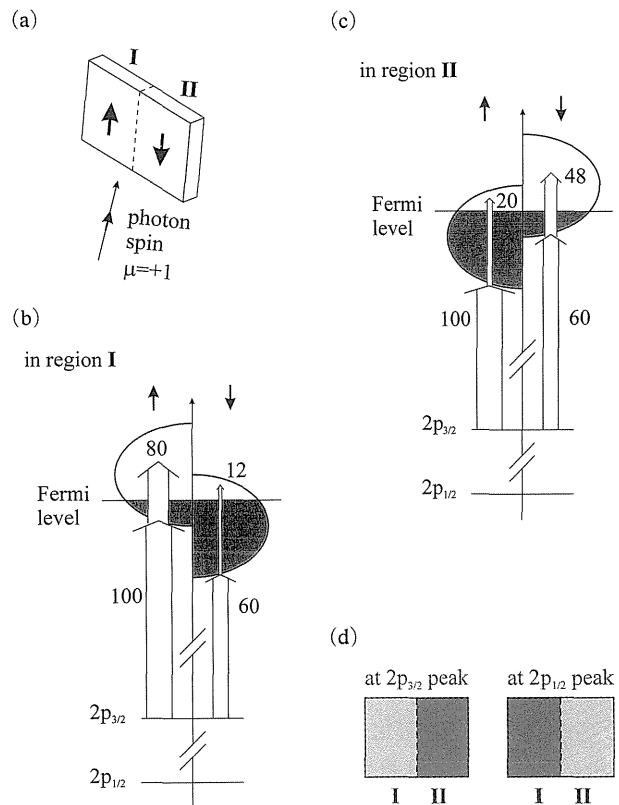


Figure 3. The principle of XAS-MCD microscopy. (a) The circularly polarized soft x-ray of photon spin $\mu=+1$ is incident on the sample in a small grazing angle. The grazing angle is assumed to be zero degree for simplicity, and that half of the sample is assumed to be magnetized parallel to the photon spin (region I) and the other half, antiparallel (region II). (b) The $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ XAS transition probability by photon with spin $\mu=+1$ depends upon the electron spin and the ratio is 100:60. Assuming that the filling of the up and down spin 3d bands are 1/5 and 4/5 in regions I and II, the allowed transition probabilities of up and down spin electrons become 80 and 12, the sum being 92. (c) In region II, the allowed transition probabilities are 20 and 48, giving the sum of 68. (d) The difference in the sum intensity of $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ transition, 92 for region I and 68 for region II, gives the magnetic contrast. For $2p_{1/2} \rightarrow 3d$ transition, the sum intensities are 28:52 between region I and II, giving an opposite contrast compared with the $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ transition.

エネルギーが異なる。前者を $2p_{3/2}$ 状態、後者を $2p_{1/2}$ 状態と呼ぶ。エネルギーの違いを利用して、どちらかの電子だけを選択的に励起することができる。すなわち、 $2p_{3/2}$ と 3d の軌道間のエネルギーを持つ光を用いれば $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ 遷移を起こすことができる。

次に、円偏光によって $2p \rightarrow 3d$ 遷移をおこすと、光スピンと同じ上向きの軌道角運動量を持つ (光の電磁場と同じ向きに公転している) 電子が励起されやすい。ここにスピン軌道相互作用の効果を考えると、 $2p_{3/2}$ 状態からは光スピンと同じ上向きのスピン (\uparrow) を持つ電子が、 $2p_{1/2}$ 状態からは逆の下向き (\downarrow) の電子が励起されやすい。励起確率を計算すると、 $2p_{3/2}$ 状態からの励起確率が \uparrow の電子で 100 とすると \downarrow では 60 となり (Fig. 3(b), (c)), $2p_{1/2}$ 状

態からは↑が20, ↓が60となる³⁾。

さて, 2p 電子が励起される先である 3d 軌道はどうなっているであろうか。一般に, 原子の磁化ベクトル M は, 原子内の電子の軌道角運動量とスピンのベクトルそれぞれの和 L と S で $M = -\mu_B(L+2S)$ と表される。マイナス符号は, 電子が負の電荷を持っているためである。Fe において, M の大部分は 3d 電子の S が担っている。従って, M が上向きの部分 I では S は下向きとなり, 下向きスピン↓の電子の方が↑の電子より多い。上向き磁化の Fe において, 仮に↓軌道の4/5が, ↑軌道の1/5が占有されているとしよう (この割合は現実の Fe とは異なる)。ここで, 2p から励起されてきた電子は, 占有されている状態には入ることができない。例えば部分 I の $2p_{3/2}$ から実際に 3d 軌道に励起されるのは, ↑の電子が $100 \times 4/5 = 80$ と ↓の電子 $60 \times 1/5 = 12$ の計 92 である (Fig. 3(b))。同様に部分 II では 68 となる (Fig. 3(c))。光吸収強度は実際に起こる励起の確率に比例するので, $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ 光吸収強度は部分 I と II で 92 : 68 となる。同様に, $2p_{1/2} \rightarrow 3d$ では, 部分 I と II で 28 : 52 である。このように, $2p_{3/2}$ XAS では, 光スピンの向きに磁化した部分の光吸収強度が強くなり, $2p_{1/2}$ XAS では, 逆向きに磁化した領域が強い (Fig. 3(d))。

XAS-MCD はスピンだけでなく軌道角運動量にも敏感である。軌道角運動量は, 磁化容易方向や磁気光学効果の発現に重要な役割を果たすため, XAS-MCD 顕微分光を用いてこれを調べることは重要であるが, 紙面の制約のため本稿では議論しない。

2.3 光源と SPring-8 での setup

XAS-MCD 顕微分光に必要な光は, いうまでもなく円偏光であるが, エネルギー領域としては, 軟 X 線が一番よく用いられる。これは, 強磁性体の中で主に磁気モーメントを担っているのが, ほとんどの場合 3d 遷移金属 (周期律表の Ti から Ni の元素) または希土類元素 (La から Yb) であるためである。Fe などの 3d 金属の場合, 上述のように 3d 軌道が磁気モーメントの大部分を担い, スピンや軌道角運動量の状態は $2p \rightarrow 3d$ XAS-MCD で調べることができる。一方希土類の場合は, 4f 軌道が磁気モーメントの大部分を担い, $3d \rightarrow 4f$ XAS-MCD が用いられる。これらの XAS-MCD で必要な光が, 450~1600 eV の軟 X 線円偏光である。

円偏光度が高く, 強度の強い軟 X 線円偏光を得るには, 電子蓄積リングの直線部で電子をらせん運動させるヘリカルアンジュレータが適している。蓄積リングの偏向磁石部からの放射光のうち, 軌道面より上または下に放射する光も円偏光であるが, 円偏光度, 強度ともにヘリカルアンジュレータには及ばない。ヘリカルアンジュレータでは, 高次光強度が非常に弱く, 1 次光を用いる。このため軟 X

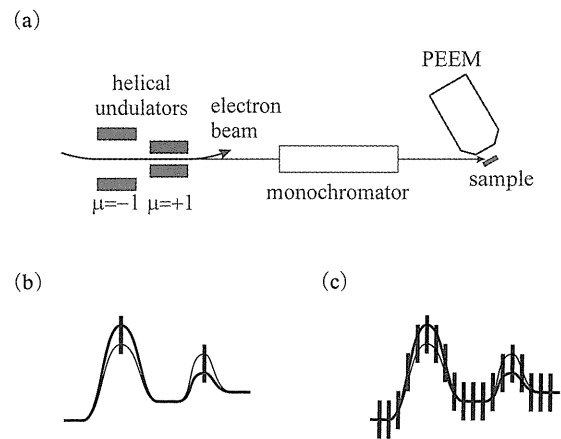


Figure 4. (a) The schematic view of the experimental setup of the XAS-MCD microscopy using PEEM in SPring-8. One of the two helical undulators giving photons with spin $\mu = +1$ and $\mu = -1$ was used and the other was fully opened so that it does not generate photons. The soft x-ray was monochromatized by the monochromator and was lead to the sample mounted on the PEEM. (b) For magnetic domain imaging, PEEM images were taken only at the $2p_{3/2}$ and $2p_{1/2} \rightarrow 3d$ XAS peaks. (c) For XAS-MCD microspectroscopy, PEEM images were taken at many photon energies over the whole $2p \rightarrow 3d$ XAS region.

線領域の円偏光を出すには蓄積電子のエネルギーが 6 GeV~8 GeV 前後の蓄積リングが望ましい。

XAS-MCD 顕微分光を高い空間分解能で行うには, 光源の光強度が強だけでなく, 高輝度すなわち単位面積当たりの光強度が強ことが要求される。そのためには, 高輝度放射光源が必要となる。

我々は, これらの要求を満たす世界的にも数少ない光源の一つである SPring-8 の BL25SU⁷⁾において, ビームラインの稼動開始後まもなくの1998年秋から1999年春にかけて, PEEM を用いた XAS-MCD 顕微分光を行った。この研究プロジェクトは日独の協力で行われた。

実験のセットアップは Fig. 4(a)に示す通り, ヘリカルアンジュレータから発生した円偏光軟 X 線を分光した後, PEEM にセットされた試料に導くというものである。BL25SU の特長は, 2 台のヘリカルアンジュレータが直列に置かれており, 互いに逆の極性 (光スピン $\mu = -1$ と $+1$) の円偏光を出すように設定できることである。極性の選択は, 使いたい極性のアンジュレータのギャップのみを閉じ, 使わないほうのアンジュレータはギャップを全開にすることで行う。こうすることで, ギャップの開閉だけで円偏光を反転できる。ギャップの開閉は 1 日に何度でもユーザーが自由に行える。(将来的には, ギャップを両方閉じておいて, キッカーマグネットで電子軌道を制御することで, ビームラインに導かれる円偏光の極性を反転できるようにする。)

2.4 XAS-MCD「顕微鏡」と「顕微分光」

XAS-MCD 顕微分光の実験は、目的に応じて2通りのやり方があり、それぞれ「顕微鏡」と「顕微分光」の考え方に基づいている。まず、XAS-MCD「顕微鏡」は、主として磁区構造の観察に用いられ、3章で述べる実験がこの方法を取っている。例えば、Feの磁区構造を調べるには、Fig. 4(b)に示すようにFe 2p XASの光吸収ピークの光エネルギーでのみXAS顕微鏡像を測定すればよい。例えば $\mu=+1$ の円偏光で2p_{3/2} XASのピークで顕微鏡像をとれば、Fig. 1(b)のように磁化方向に応じた濃淡が現れる。一方、XAS-MCD「顕微分光」は、電子の磁気的な状態をより詳細に調べるために用いられ、4章の実験がこの方法で行われている。この方法では、Fig. 4(c)に示すように、調べる対象元素の光吸収領域の多数の光エネルギーに対して、二つの円偏光それぞれに対してXAS顕微鏡像をとる。これによって顕微鏡視野内の全ての点（即ち顕微鏡像を取り込むCCDカメラの各画素）について、 $\mu=+1$ と -1 の光に対する2本の吸収スペクトル（XAS-MCDスペクトル）が得られることになる。これらのスペクトルを解析することで、試料上の各点における、スピンの軌道角運動量の光スピン方向成分の大きさをはじめとした詳細な電子状態を明らかにできる。この意味で、「顕微分光」は「電子状態を見る顕微鏡」ということができる。

3. パルス磁場による磁区構造の変化

磁場による磁区構造の変化を調べる目的で、Si基板上に作製された多結晶Co薄膜の長方形マイクロ磁性構造を用いて研究を行った⁸⁾。試料は電子線リソグラフィとリフトオフの手法で作製され、Co膜厚は30 nm、長方形の2辺はいずれも0.5~32 μm まで2倍のステップで変化させた。

この章で述べる実験では上述のように、XAS-MCD「顕微鏡」の方法で磁区構造を決定した。PEEM視野内の感度の不均一性を考慮し、ここでは2p_{3/2}と2p_{1/2}の両方で顕微鏡像をとって、MCD強度を平均の光吸収強度で規格化した。すなわち、試料上のある点における2p_{3/2}、2p_{1/2}ピークでの光電子強度 $I(2p_{3/2})$ 、 $I(2p_{1/2})$ から、非対称性 $(I(2p_{3/2}) - I(2p_{1/2})) / (I(2p_{3/2}) + I(2p_{1/2}))$ を求めた。この非対称性は磁気モーメントの光スピン方向成分の1次関数である。

3.1 As-madeの磁区構造

まず、作製したままの状態での長方形マイクロ構造の非対称性像を測定するとFig. 5のようになった。円偏光は図の右下の矢印の方向に、試料面と30°の角度で入射させた。 L_x 、 L_y は、長方形のx、y方向それぞれの長さを表している。長方形内部に矢印で示したように、最も明るい部分が上向きに磁化しており、最も暗い部分が下向きに磁化している。中間の明るさの部分は、ほぼ横向きに磁化しており、右向きか左向きかは磁区構造の並び方から推定でき

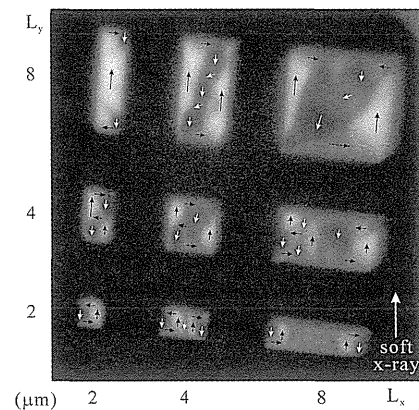


Figure 5. As-made asymmetry image revealing domain structures of rectangular microstructures. Numbers at the sides show the width (L_x) and length (L_y) of the rectangles on corresponding columns and rows. The circularly polarized soft X-ray was incident in the direction shown by the arrow on the lower right-hand corner with a grazing angle of 30° from the sample surface. White and dark gray parts in the rectangles correspond to domains magnetized upward and downward, as indicated by arrows. Light gray parts are magnetized to nearly horizontal directions, and whether they are right or left can be deduced from the geometrical connection of the domains.

る。最も単純な磁区構造は、 $L_x \times L_y = 2 \times 2 \mu\text{m}^2$ の正方形で見られ、磁化方向が正方形の中心の周りに渦状に並んだ構造を取っている。他の長方形においても、漏れ磁場が少なくなるような磁区構造をとっていることが分る。

3.2 パルス磁場による変化

つぎに、これらのマイクロ構造にパルス磁場をかけた。約10 Oeから始めて、順に大きな下向きのパルス磁場（最大288 Oeまで）をかけ、各パルス磁場を印加した後の磁区構造を観測したのがFig. 6である。

長方形の長辺に沿って磁場をかけたFig. 6(a)、(b)の場合、(a)では108 Oe、(b)では72 Oeで、まず渦状の磁区構造（を縦に伸ばしたもの）が実現している。次に、(a)では162 Oe、(b)では126または162 Oeでほぼ下向きに飽和磁化している。

正方形の場合、大きさの異なるFig. 6(c)と(d)を比較すると、108 Oeまでは互いによく似た変化をしているが、それ以上の磁場による磁化過程は大きく異なる。(d)では162 Oeで渦状の磁区構造が実現し、それ以上のパルス磁場でも変化は見られなかった。これに対し、(c)では288 Oeのパルス磁場まで複雑な磁区構造のままであった。これらのことと、 $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ の渦状磁区構造もこの範囲で変化しなかったことから、渦状の磁区構造が特に小さな正方形で安定であることがわかる。

一方、磁場が長方形の短辺に沿っているFig. 6(c)、(f)の場合、パルス磁場をかけると、ある複雑な磁区構造から別の複雑な磁区構造に遷移しており、288 Oeまでのパル

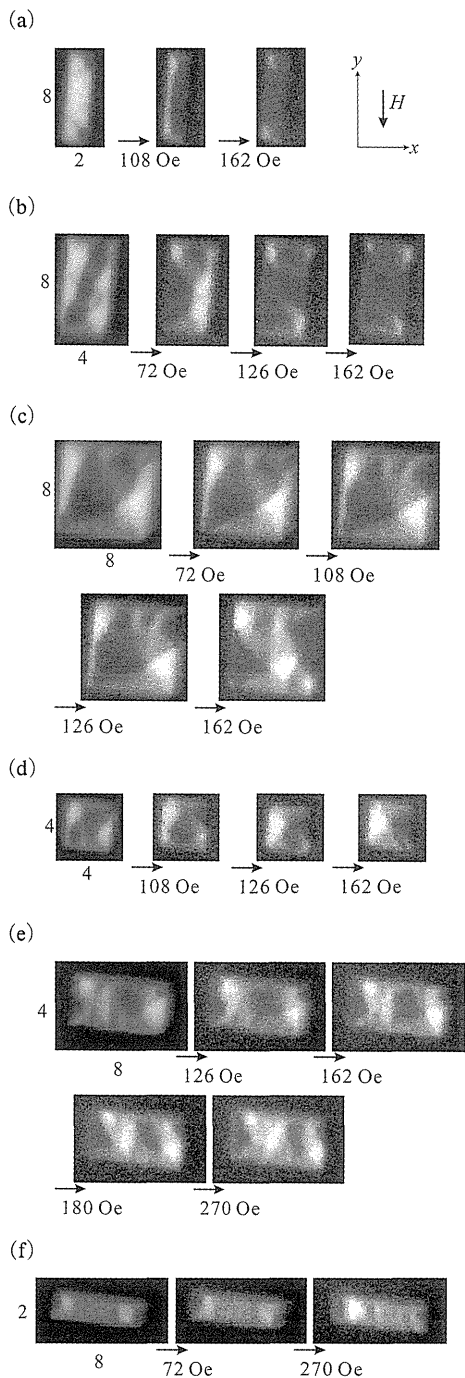


Figure 6. Magnetization processes of rectangular structures by downward magnetic field pulses of $L_x \times L_y = 2 \times 8$ (a), 4×8 (b), 8×8 (c), 4×4 (d), 8×4 (e) and 8×2 (f) μm^2 patterns are displayed. Downward magnetization corresponds to dark gray. Rectangles tend to be nearly saturated more easily by magnetic pulses along their longer sides.

ス磁場で飽和には至らなかった。短辺に沿った磁場によって飽和磁化しにくいことは、定性的には形状磁気異方性で理解することができる。

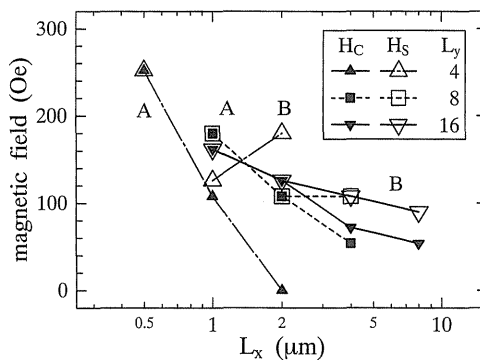


Figure 7. Dependence of the coercive field H_C and the saturation field H_S on the width (L_x) and the length (L_y) of rectangles where the magnetic field is in the y-direction. For a fixed L_y , H_C decreases as L_x is increased. While H_S coincides with H_C for smaller L_x , it deviates from H_C for larger L_x .

3.3 磁化反転過程—保磁力と飽和磁場

最後に、長辺に沿った磁場による磁化反転過程を調べるため、下向きの288 Oeのパルス磁場で飽和した後、上向きのパルス磁場をかけて磁区構造の変化を観察した。すると、磁化反転過程は2種類の転移磁場で特徴づけられることが分った。一つは、初期状態である下向きの飽和磁化の状態から何らかの変化があった磁場で、これを保磁力 H_C と定義する。一方、上向きに飽和される磁場を飽和磁場 H_S と定義する。

H_C と H_S の L_x および L_y 依存性を、 L_y を一定としたときの L_x 依存性として示したのが、**Fig. 7** である。調べた長方形マイクロ構造は、大きく2種類に分類される。一方のグループは、 $H_C = H_S$ 、即ち下向きに飽和磁化した状態から一気に上向きに飽和した状態に変化する。もう一方のグループは、まず H_C で渦状の磁区構造に変化し、次に H_S で飽和磁化される。Hefferman らは前者をタイプ A、後者をタイプ B と名づけた。**Figure 7** において、タイプ A は L_x が小さい領域で、タイプ B は L_x が大きい領域で見られる。

一定の L_y について、 H_C は L_x の増加とともに減少し、その傾きは L_y が大きいほど小さいことが **Fig. 7** よりわかる。一方、タイプ B 領域における H_S は、 $L_y = 4$ のみ L_x の増加とともに増加し、それ以上の L_y についてはほとんど L_x によらないか、むしろ L_x の増加とともに減少していることがわかる。

Figure 7 において $2 \times 4 \mu\text{m}^2$ の長方形の H_C が 0 であるのは、一見不自然と思われるであろう。 $H_C = 0$ とした根拠は、この長方形が下向きに飽和磁化した後、パルス磁場をかけていないにもかかわらず自然に渦状の磁区構造に変化したことである。この磁区構造の変化は、熱的揺動かあるいは外部からの漏れ磁場をきっかけとして、安定な磁区構造に変化したと理解できる。

4. 単結晶磁性多層膜の XAS-MCD 顕微分光

磁性マイクロ構造の磁気的特性を理解しさらに制御するために、XAS-MCD「顕微分光」でスピンや軌道角運動量の定量的な見積りを、顕微鏡の分解能でかつ元素選択的に行うことができる。我々は、単結晶磁性多層膜の磁気的状態の、特定の層の膜厚に対する依存性を調べるために、その層をウェッジ状に蒸着した（即ち、その層の膜厚を空間的に変化させ、断面がくさび型になるように蒸着した）多層膜を作製した。これによって、PEEM 視野内での位置と、その層の膜厚が対応させることができる^{9,10}。

4.1 Fe/Co/Cu(001) 2 層膜の Fe 電子状態

Fe/Co/Cu(001)多層膜は、まず Cu(001)単結晶基板上に Co を fcc 構造で 6 原子層 (ML) の厚さにエピタキシャル成長させ、その上に Fe を 0~14 ML のウェッジ状に成長させたものを用いた。ウェッジの幅を約 250 μm とすることで、0~14 ML の範囲を PEEM の視野内に収めることができた。なお、Fe を蒸着する前に Co を (110) 方向（試料面内）に磁化した。

複数の磁性層のいずれかの状態を抜き出して調べたいとき、XAS-MCD 顕微分光の元素選択性が非常に有効に活用される。これは、可視光領域の磁気光学顕微鏡や、ローレンツ顕微鏡といった磁区構造を調べるほかの手法にはない利点である。

Fe の 3d 電子状態を調べるため、Fe 2p \rightarrow 3d XAS 領域の 121 点の光エネルギーで二つの円偏光に対して PEEM 像を測定した。**Figure 8** は 121 \times 2=242 枚の PEEM 像から抽出して得た $x=35 \mu\text{m}$, $y=100 \mu\text{m}$ の点の XAS 強度と、XAS-MCD スペクトルである。ここで、上の段が $\mu=+1$ (破線) と $\mu=-1$ (実線) の XAS スペクトル、下の段が $\mu=+1$ から -1 を引いた MCD スペクトルである。このスペクトルから、Fe の 3d 電子のスピンや軌道角運動量の光スピン方向の成分を求めることができる。その原理は磁気光学総和則とよばれ、具体的には、円偏光の各極性のスペクトルを積分することでこれらの量を求める。**Figure 8** と同様のスペクトルが、PEEM 像内の各画素すなわち PEEM 視野内の対応する微小領域それぞれについて得られる。ここでは、1500 組の XAS-MCD スペクトルを解析することで、370 \times 150 μm^2 の領域における Fe 3d スピンの分布を求めた。

Figure 9 が Fe ウェッジ領域の Fe 3d スピンによる磁気モーメント (スピンモーメント) の分布を濃淡 (図の右のスケール参照) で示したものである。Fe の膜厚は x 方向に変化しており、スピンモーメントの変化から大きく 3 つの領域すなわち 0-4.5 ML (領域 I), 4.5-11 ML (II), 11 ML 以上 (III) に分けられる。領域 I のスピンモーメントはかなり大きく、1.5-2 ML 領域で 2.5 μB であるのに対し、領域 II では大きく減少し、6-7 ML で 0.7 μB である。領域 III では再び大きなスピンモーメントが回復し

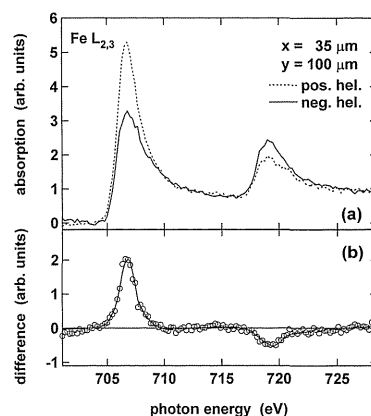


Figure 8. (a) Fe $L_{2,3}$ absorption spectra of a single $1.5 \times 3 \mu\text{m}^2$ pixel at coordinates $x=35 \mu\text{m}$, $y=100 \mu\text{m}$. The dashed (solid) line depicts absorption for positive (negative) helicity. (b) Difference between the two curves of (a).

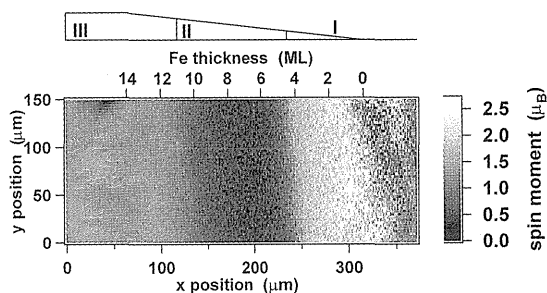


Figure 9. The lateral distribution of Fe spin moment μ_s obtained by the pixel-by-pixel sum-rule analysis of the imaged area in Fe/6 ML Co/Cu(001). Different levels of gray correspond to different values of μ_s , as explained in the legend. Three different phases as schematically shown are characterized by different moments.

ており、14 ML のとき 1.8 μB であった。一方、Fe の下の Co 層からの 2 次電子も 14 ML 程度の Fe 層は通り抜けるので、Co 2p \rightarrow 3d XAS-MCD 顕微分光で Co 層のスピンモーメントを見積もれる。その結果、Co 層は Fe の膜厚によらず 1.6 μB のスピンモーメントを持っていた。

Fe のスピンモーメントの Fe 膜厚依存性は次のように解釈できる。領域 I では、fcc に近い構造（厳密には fct）で成長した Fe が全て強磁性的になっているため磁気モーメントが大きい。これに対して領域 II では、構造は領域 I とさほど変わらないが、表面だけが強磁性的で内部が常磁性なため、2 次電子の脱出深度内の平均スピンモーメントが小さくなったと解釈できる。一方、領域 III では、Fe はバルク状態と同じ bcc 構造になっているため、バルクのスピンモーメント 2.2 μB に近い値になっている。

4.2 Ni/Fe/Co/Cu(001) 3 層膜

次に、前節の多層膜の上にさらに Ni のウェッジを、今度は膜厚を変化させる向きを 90° 直交してつけた **Fig. 10**

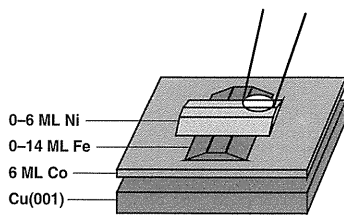


Figure 10. Sketch of the double-wedged sample. The wedge-shaped Fe and Ni films were prepared by evaporation through apertures of $2 \times 0.5 \text{ mm}^2$ placed 1 mm in front of the sample, and rocking the sample about the long axis of the aperture. The circle highlights one of the four areas of crossed Ni-Fe double wedges in which the measurements were carried out.

のような3層膜を作製した。目的は、上からNiを蒸着したことによるFeの状態の変化や、各層間の磁氣的結合を調べることである。

Figure 11(a)が上と同様にしてFeのスピンモーメントの分布を求めた結果である。x方向にFe膜厚が、y方向にNi膜厚が変化している。Niが1.5 MLより薄い領域はFig. 9と同様に領域I, II, IIIが見られる。これに対し、Ni膜厚が1.5 ML以上になると、Fig. 11(b)にも見られるように、5 ML付近のFe膜厚においてFeスピンモーメントの顕著な減少が見られる(領域IIa)。

では、Niのスピンモーメントはどうなっているのだろうか。Figure 11(c)にNi $2p \rightarrow 3d$ XASの $2p_{3/2}$ ピーク強度の $\mu = +1$ と -1 の円偏光の間の非対称性の分布を示す。これはNi $3d$ スピンモーメントの分布を定性的に反映している。Figure 11(a)と比較すると、丁度領域IIaに相当する部分でのみNiモーメントが負になっていることがわかる。それ以外の領域では、Niモーメントは正で、ほぼ一定の値を取っている。このことより、Niは、領域IIaでのみ下地のCoと反強磁性的に結合し、それ以外の部分ではCoと強磁性的に結合していることがわかる。

これらのFeとNiの振る舞いは、Fe層を通したCoとNiの磁氣的結合が、Fe層の膜厚変化とともに強磁性と反強磁性の間を振動すると考えると理解できる。即ち、領域IIaではCoとNiが反強磁性的に結合しているために、両者に挟まれたFe層のモーメントが小さくなる。

磁氣的結合の「振動」といっても、Fig. 11では2回目の反強磁性結合は見られていない。これは、2回目の反強磁性結合に相当する膜厚では、Fe層が既にfccからbccに変化してしまっているためである。この構造相転移の起こる膜厚は、残留ガス濃度の増大とともに大きくなることが知られている。これを利用して、少し真空度の悪い状態で同じ試料を作製したところ、Fe膜厚が5 ML付近に加えて11 ML付近でもNiがCoと反強磁性的に結合することが確かめられた。

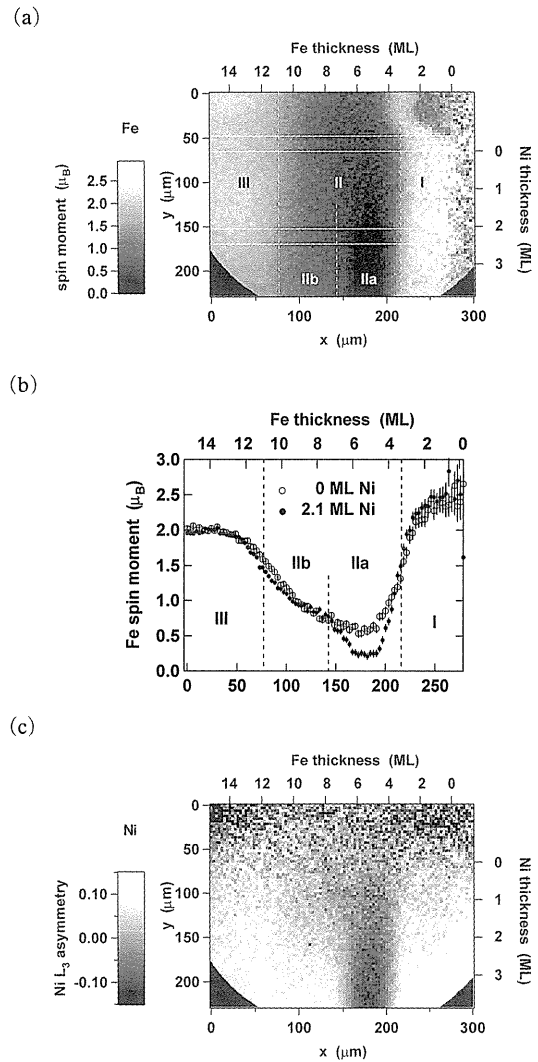


Figure 11. (a) Result of the pixel-by-pixel sum-rule analysis for the Fe spin moment μ_s . The thickness of the Fe wedge increases from right to left and the thickness of the Ni wedge from top to bottom, as indicated at the top and right axes. Regions with different values of μ_s are marked by dashed vertical lines and labeled I through III, IIa, IIb. The white rectangles indicate the positions at which linescans are presented in panel (b). (b) Horizontal linescans of μ_s of the uncovered Fe/6 ML Co/Cu(001) layer (open symbols) and of 2.1 ML Ni/Fe/6 ML Co/Cu(001) (solid symbols) at the positions indicated in panel (a). (c) Ni $2p_{3/2}$ absorption asymmetry image of the difference between peak and pre-edge intensities for opposite helicities. Note that here, in contrast to panel (a), the grayscale is symmetric around zero. Around x coordinate $180 \mu\text{m}$ the Ni magnetization is antiparallel to the Fe and Co magnetization.

5. 10 nm オーダーの分解能を目指して

XAS-MCD 顕微分光は、まだ完成というには程遠く、あらゆる意味で発展途上である。本稿で紹介した実験も、光源としてSPring-8を用いてはいるが、ビームラインの稼動開始直後に行ったこともあり、SPring-8の性能を活かしきれたとは言えない。XAS-MCD 顕微分光の最も重要な性能は、高い空間分解能でかつ短時間で良質のデータが取れることである。このために必要なことは、高い光子

密度, 空間分解能の高い測定器と振動の少ない実験環境である。光子密度は, 縮小倍率が高くかつ透過率の高い集光光学系を採用することで高くできる。特に, SPring-8の30 mの長直線部は, 光源サイズがより小さいことと, アンジュレータの1次光のピークがより鋭いことから, 非常に魅力的といえる。

一方, 測定器の分解能は, 励起光として軟X線を用いることが原因で従来は100 nm程度であった。PEEMの分解能は, 2次電子のエネルギー的広がり小さいほど良くなる。これは, 電子のエネルギーが異なれば電子レンズによる収束条件も異なる(エネルギー収差)ためである。通常, 高分解能を追求するには仕事関数よりわずかに高エネルギーの水銀ランプのような紫外光源を用いる。ところがXAS-MCD顕微分光では軟X線を用いるため, 2次電子がエネルギー的に広がってしまい, 空間分解能が悪くなるのである。エネルギー分解を行わないため, 励起光エネルギーが高い場合はエネルギー収差が大きくなることになっている。従ってさらに空間分解能を上げるには, 2次電子全てを取り込む従来にPEEMと違って, 光電子のエネルギー分解を行った上でイメージングを行えるエネルギー分解型PEEMを用いることが必要である。エネルギー分解を行えば, 当然光電子強度は減少するので, 光子密度の向上はこの点からも重要である。さらに, 言うまでもなく振動はPEEM装置の大敵である。実際, Fig. 5のような測定の際, 1 μm オーダーで像が動くことがあった。従って, 空間分解能の高い測定を行う際, 除振台が不可欠である。

これらが全て満たされれば, 20 nm程度の空間分解能での測定が可能となると期待される。そうすると, デバイ

スや磁気記録媒体, さらには量子ドットといった, 現在もっとも注目されている磁性微小構造の典型的なサイズに追えることができる。我が国でそのような実験ができるようになる日が一日でも早くやってくることを期待したい。

謝辞

本稿で紹介した実験は, 高輝度光科学研究センター(JASRI)によって採択されたSPring-8利用研究課題(1999A0319-NS-np)の中で行ったものである。本研究は, 日本学術振興会ならびにDeutsche Forschungsgemeinschaftによる補助を受けた日独共同研究である。3章で紹介した研究は, 蒲生健次, 柳沢淳一, 木村崇の各氏との共同研究である。また, 本研究を行うにあたり, 斎藤祐児, 松下智裕, 小嗣真人, 大門寛の各氏ほか多くの方々のお世話になった。この場を借りて深い感謝の意を表したい。

参考文献

- 1) G. Schütz, et al.: Phys. Rev. Lett. **58**, 737 (1987).
- 2) C. T. Chen, et al.: Phys. Rev. **B 42**, 7262 (1990).
- 3) 今田 真, et al.: 日本物理学会誌 **55**, 20 (2000).
- 4) P. Fischer, et al.: J. Phys. **D 31**, 649 (1998).
- 5) J. Stöhr, et al.: Science **259**, 658 (1993).
- 6) C. M. Schneider: J. Magn. Magn. Mater. **175**, 160 (1997).
- 7) Y. Saitoh, et al.: Rev. Sci. Instrum. in press.
- 8) S. Imada, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. in press.
- 9) W. Kuch, et al.: J. Appl. Phys. in press.
- 10) W. Kuch, et al.: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. in press.