

機関番号：84502

研究種目：基盤研究（S）

研究期間：2006～2010

課題番号：18101004

研究課題名（和文） 時間分解光電子顕微鏡による超高速磁気応答現象の観測

研究課題名（英文） Observation of ultra-fast magnetic response by a time-resolved photoemission electron microscope

研究代表者

木下 豊彦（KINOSHITA TOYOHIKO）

財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主席研究員

研究者番号：60202040

研究成果の概要（和文）：磁気円二色性を利用した放射光光電子顕微鏡において実現していた磁気イメージング観察をさらに発展させ、ポンプ&プローブ観察手法と組み合わせ、磁気応答のサブナノ秒領域のダイナミクスの実空間観察に成功した。微小磁性ドットの磁場パルスに対する応答を観測し、さらに、ドットが近接して配置されている場合の相互作用についても観測に成功した。磁場パルスのみならず、電場パルス、光パルスなどの外場を与えたときの応答ダイナミクスの可視化も実現した。

研究成果の概要（英文）：We have successfully constructed pump&probe time-resolved photoemission electron microscope system (TRPEEM) at the soft-x-ray beamline of SPring-8. Combining TRPEEM with magnetic circular dichroism effect in absorption spectra, dynamics of the vortex structure of small magnetic dots could be observed in sub-nsec regime in response to magnetic field pulse. The interaction effect between the neighboring dots was also observed. Further, dynamical observation against the electric field pulse and laser beam pulse also became possible.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	35,800,000	10,740,000	46,540,000
2007年度	35,200,000	10,560,000	45,760,000
2008年度	4,600,000	1,380,000	5,980,000
2009年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
2010年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
総計	84,500,000	25,350,000	109,850,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学、ナノ構造科学

キーワード：メゾスコピック物理

1. 研究開始当初の背景

放射光を励起光源とする光電子顕微鏡は、元素選択性を持ち、電子状態や磁気状態を観測できる非常に有力な顕微法である。研究代表者の所属する SPring-8 でも装置が導入され、共同利用研究が開始された。しかし、エネルギー・空間分解のほかにもうひとつ重要な時間軸の能力を生かした実験は、諸外国で発展しつつあるものの、国内ではまったく手をつけられていない状況にあった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、SPring-8 の光電子顕微鏡をさらに発展させ、ポンプ&プローブ観察法と組み合わせることで、時間分解光電子顕微鏡を実現し、特に磁気ダイナミクスの研究を発展させることである。諸外国で実現している、磁場パルスに対する磁性ドットの磁区ダイナミクスの観測ばかりでなく、まだ手をつけられていない、光子場、電場など、そのほ

かの外場を、ポンプとして用い、それに対する応答特性を観察する。これにより、新たな磁気記録方式開発の基礎的な情報を得たり、磁性そのものに対する基礎的な知識が深まったりすることが期待される。また、同様の方式を光電子顕微鏡以外の分光法へ応用を視野に入れることで、放射光分光の発展を目指す。

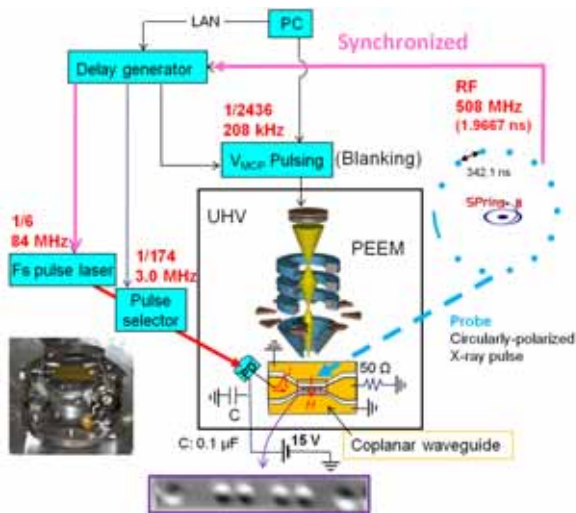
3. 研究の方法

研究の目的を達成するために、放射光パルス（蓄積リングのバンチに対応する。）とポンプ光である、レーザーを同期させるシステムを導入することにした。レーザーによってフォトダイオードの高速スイッチングを実現し、そこに接続したマイクロストリップラインに電流を流すことで、磁場や電場パルス的高速スイッチングを実現する。あるいは再生増幅器を利用し、そこからの高強度パルスレーザーをポンプ光とする。これらのポンプ役を果たす外場と、放射光パルスとのタイミングを制御し、高速応答現象を顕微鏡画像としてストロボ写真のように撮影する。

SPring-8 の時間分解測定用の運転モードは他の放射光施設よりも複雑なので、その影響を避けるようなデータ蓄積システムを構築する。

4. 研究成果

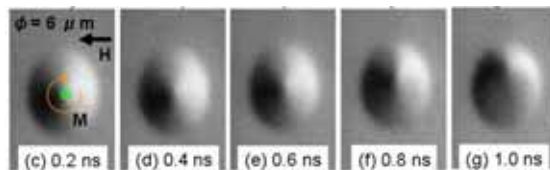
下の図に示すような放射光とレーザーの同期システムを構築した。放射光バンチパルスと同期した、508 MHz の高周波信号は、チタンサファイヤレーザーの基本周波数の6倍に相当する。レーザーパルスのタイミングは、遅延トリガクロック回路（Delay



generator) で制御されており、pulse selector で放射光の孤立バンチとだけ同期を取ったレーザーパルスを取り出す。このパルスは放射光パルスと任意のタイミングで、サンプル、

あるいはフォトダイオードに照射できる。一方、SPring-8 の時間分解測定用の運転モード、セベラルバンチモードでは、時間分解測定に有効な孤立バンチだけでなく、ほかの多くのユーザーの要望を満たすために、蓄積電流を確保するための連続バンチトレインを含んでいる。この部分は時間分解とは関係ない信号になるので、光電子顕微鏡の検出器（MCP）にかける高電圧を、そのタイミングで高速に降下させることで、孤立バンチに由来する信号のみのイメージングを行うことに成功した。

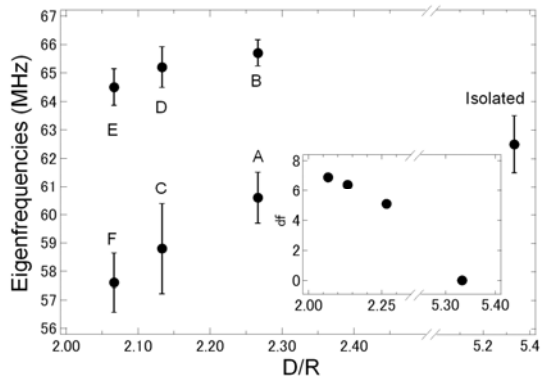
ここで示したストリップラインには、約 300 ps ~ 数 ns 幅の電流が流れ、その間磁場パルスが生じていることを確認した。磁場のピーク強度は約 6 mT である。ストリップラインはコプレーナー型とし、インピーダンス整合をとることにより、反射のほとんどない磁場パルスを印加することに成功した。磁場パルスに対応する磁区運動の様子は、放射光バンチとレーザーパルス(磁場パルス)の同期タイミングを少しずつ変えることで、光電子顕微鏡の磁区イメージを取得した。6 μ の直径をもつパーマロイドに対して下図



に示すような運動が、サブナノ秒の分解能スケールで観測できた。

さらに、このような孤立ドットだけでなく、互いに近接し、相互作用があると考えられるドット（配列）の磁区ダイナミクスの観測にも成功した。直径は同じ 6 μ のドットを 2 つ配置し、その距離を近づけていくと、磁場印加中のコアの変位が、だんだん小さくなること、さらには磁場印加後の、コアのオ差運動の振動周期が、孤立円盤のそれに比べて徐々に変化していく様子を始めて実空間のイメージとして観測することに成功した。

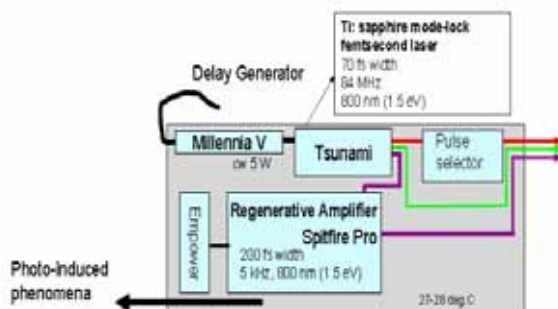
その周波数の変化をドット間の距離の関数として示したグラフを下図に示す。



ここで、D/R の D は円盤間隔で、円盤の中心

間の距離である。R は円盤半径の 3μ であり、A&B,C&D,E&F がそれぞれの距離で配置された 2 つの円盤の周波数に対応している。図に示すように、孤立(isolated)の場合に比べ、円盤のコアの周波数は距離が近づくにつれて、より大きくずれていくことが分かる。また、図中に挿入したグラフは上記 3 組の円盤の周波数の差分を示しており、この周波数も距離の関数としてプロットしたものである。やはり、距離が近づくにつれて周波数のずれが大きくなっている様子が良く分かる。これらの周波数のずれ、および距離の関数としてのコアの変位の差は、ドット間に磁気双極子相互作用が働いているためだと考えられ、マイクロマグネティックシミュレーションでも定性的な説明は可能であることが分かった。

本研究では、磁場以外の外場として、光パルスや電場パルスを利用するためのシステムも構築した。光パルスに関しては、チタンサファイアレーザーの基本波を種光とした再生増幅器を導入し、より強力な光パルスでの光誘起相転移現象のダイナミクスを観測することを目指した。5 kHz の繰り返し周波数で、放射光との同期を取ることに成功している。(下図参照。) 5 kHz の繰り返し周波数では、イメージングの効率が相当落ち

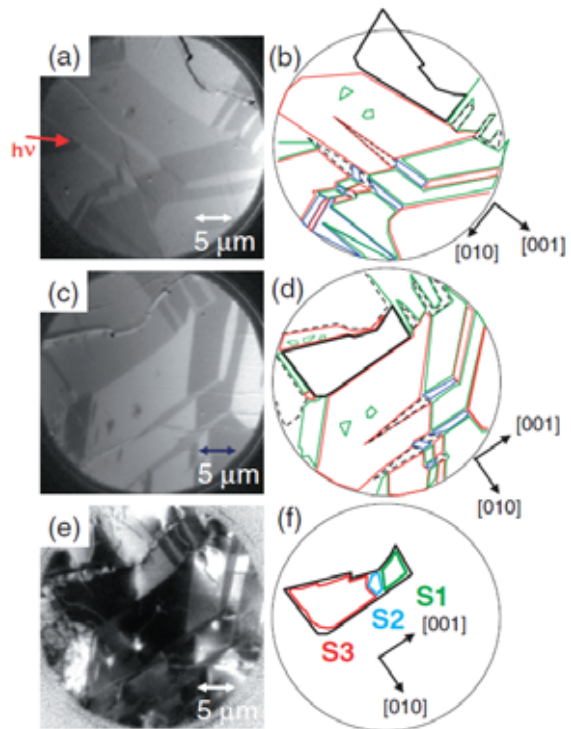


ることが予想される。そのため、放射光ビームラインの回折格子として、あらたに低刻線密度のものを導入し、エネルギー分解能は多少犠牲にしつつも、光束密度で、これまでの 10 倍の強度を達成することができた。その結果、5kHz の周波数での光電子顕微鏡イメージングが十分可能であることを確かめた。

さらに、高周波電場を放射光バンチと同期してマイクロストリップラインに導入する技術も開発し、高周波によるマイクロ磁性ドットの運動の応答現象の観察も開始した。

これらの光誘起磁化反転や高周波導入によるダイナミクス観察の予備実験として、反強磁性体 NiO の磁区の詳細を観測したり、強磁性薄膜 GdFeCo 合金に対する光による磁化反転現象、その他の系の磁区観察を行ったりしている。NiO に関しては、磁区ばかりでなく、磁壁の観測にも成功し、さらに薄膜を成長させ、交換バイアスを示す系を作

成し、詳細な磁化方向のアサインに成功した。次に示す図に、NiO(001)面で観測された磁区構造を示す。ここでは、反強磁性歪によって



誘起される磁区 (T-domain) と、スピンによって誘起される磁区 (S-domain) が区別して観測され、S1,S2,S3 それぞれの容易磁化方向が、 $[1\ 2\ 1]$, $[2\ 1\ 1]$, $[1\ 1\ 2]$ であることが明らかになった。今後交換バイアスを示す系に働くスピントルクなどの情報が、時間分解測定によって明らかにされていくことが期待される。また、GdFeCo に関しては、再生増幅器からのレーザーパルスを円偏光にし、その左右のスイッチングによって磁化反転を行うことにほぼ成功しつつある。現在、磁化スイッチングのコントロールばかりでなくそのダイナミクスの光電子顕微鏡観察が進行中である。

以上のように、本研究によって、メゾスコピックサイズの磁性体における、磁場パルス応答現象を観測するシステムを構築し、磁性ドット間に働く相互作用の効果を明らかにしたほか、磁場ばかりでなく、電場や光パルスによる高速磁化反転現象の制御に向けたダイナミクス研究が進行しつつある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 13 件,すべて査読あり。)

“XMCD-PEEM study on magnetized Dy-doped Nd-Fe-B permanent magnet”, R.

Yamaguchi, K. Terashima, K. Fukumoto, Y. Takeda, M. Kotsugi, Y. Miyata, K. Mima, S. Komori, S. Itoda, Y. Nakatsu, M. Yano, N. Miyamoto, T. Nakamura, T. Kinoshita, Y. Watanabe, A. Manabe, S. Suga and S. Imada, IBM Journal of Research and Development (2011), in press

“Dynamics of magnetostatically coupled vortices observed by time-resolved photoemission electron microscopy”, K. Arai, T. Okuda, K. Fukumoto, M. Kotsugi, T. Ohkouchi, K. Kodama, T. Kimura, Y. Haruyama, T. Nakamura, T. Matsushita, H. Osawa, T. Muro, S. Matsui, A. Kakizaki, Y. Otani, and T. Kinoshita, Japanese Journal of Applied Physics 50 (2011)053001-1~6.

“Magnetic configuration of submicron-sized magnetic patterns in domain wall motion memory”, N. Ohshima, H. Numata, S. Fukami, K. Nagahara, T. Suzuki, N. Ishiwata, K. Fukumoto, T. Kinoshita and T. Ono, Journal of Applied Physics 107 (2010) 103912-1~9.

“Complete assignment of Spin Domains in Antiferromagnetic NiO(100) by Photoemission Electron Microscopy and Cluster Model Calculation”, K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, M. Kotsugi, K. Fukumoto, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, A. Kakizaki, and T. Kinoshita, Journal of Physical Society of Japan 79 (2010) 013703-013707. And Erratum 038001.

“Correlation between exchange bias field and domain size of ferromagnetic layers in Mn-Ir/Co-Fe bilayers”, H. Takahashi, M. Tsunoda, K. Fukumoto, T. Nakamura, K. Arai, T. Kinoshita and M. Takahashi, Journal of Applied Physics, 105 (2009),07D720-1~3.

“Construction and development of a time-resolved XMCD-PEEM system using femtosecond laser pulses at BL-25SU SPring-8”, K. Fukumoto, K. Arai, T. Matsushita, H. Osawa, T. Nakamura, T. Muro, T. Kimura, Y. Otani, and T. Kinoshita, Review of Scientific Instruments, 79 (2008) 063903-1~5.

“Characterization of spectroscopic photoemission and low energy electron microscope using multi-polarized soft x-rays at BL17SU/SPring-8”, F. -Z. Guo, T. Muro, T. Matsushita, T. Wakita, H. Ohashi,

Y. Senba, T. Kinoshita, K. Kobayashi, Y. Saitoh, T. Koshikawa, T. Yasue, M. Oura, T. Takeuchi and S. Shin, Review of Scientific Instrumentation, 78 (2007) 066107-1~3.

他 6 件。

〔学会発表〕(計 38 件)

日本物理学会第 66 回年次大会、新潟大学、2011 年 3 月 28 日(震災のため実施はされなかったが、発表成立の取り扱い。) “パルスレーザーを用いた垂直磁化 GdFeCo 薄膜の光誘起磁化反転”, 大河内拓雄, 藤原秀紀, 菅滋正, 木下豊彦, 小嗣真人, 角田匡清, 塚本新, 関山明, 新井邦明, 中村哲也, 他 4 名

日本物理学会第 66 回年次大会、新潟大学、2011 年 3 月 28 日(震災のため実施はされなかったが、発表成立の取り扱い。)

“SPELEEM を用いた Co/Ni 細線中の電流誘起磁壁移動観察”, 小山知弘, 大嶋則和, 千葉大地, 小嗣真人, 大河内拓雄, 谷川博信, 深見俊輔, 永原聖万, 鈴木哲広, 石綿延行, 木下豊彦, 小野輝男

第 24 回日本放射光学会、つくば国際センター、2011 年 1 月 7-10 日、「ミクロンサイズ磁気円盤配列における磁気ダイナミクスの時間分解光電子顕微鏡観測」、新井邦明、奥田太一、福本恵紀、小嗣真人、大河内拓雄、児玉謙司、木村崇、春山雄一、中村哲也、松下智裕、大沢仁志、室隆桂之、松井真二、柿崎明人、大谷義近、木下豊彦

放射光表面科学部会・顕微ナノ材料科学研究会合同シンポジウム 東工大 2010 年 12 月 10-11 日 “XMCD-PEEM による 3% Si-Fe(110)の局所磁区構造の観察”, 鈴木雅彦, 岩田圭司, 橋本道廣, 上田将人, 松岡由明, 安江常夫, 小嗣真人、大河内拓雄、木下豊彦、渡辺義夫、田中幸基、越川孝範

真空・表面科学合同講演会(第 30 回表面科学学術講演会・第 51 回真空に関する連合講演会)、大阪大学 2010 年 11 月 6 日、「時間分解光電子顕微鏡による微小領域磁性の観察」、木下豊彦(招待講演)

6th International workshop on nano-scale spectroscopy and nanotechnology Kobe, Japan 2010年10月25-29日 “Assignment of 3D spin axes of antiferromagnetic domains and domain walls of NiO: Combined study of MLD-PEEM and cluster model calculation”, T. Kinoshita (招待講演)

6th International workshop on nano-scale spectroscopy and nanotechnology Kobe, Japan 2010年10月25-29日 “Observation of Magnetostatically Coupled Vortices Motions in Micron-Sized Disks by Time-Resolved Photoemission Electron Microscopy”, K. Arai, T. Okuda, K. Fukumoto, M. Kotsugi, T. Ohkouchi, K. Kodama, T. Kimura, Y. Haruyama, T. Nakamura, T. Matsushita, H. Osawa, T. Muro, S. Matsui, A. Kakizaki, Y. Otani, and T. Kinoshita

6th International workshop on nano-scale spectroscopy and nanotechnology Kobe, Japan 2010年10月25-29日 “Thermal Behavior of Magnetic Domain Structure in 3% Si-Fe(110) by XMCDPEEM”, T. Yasue, K. Iwata, M. Suzuki, M. Hashimoto, M. Ueda, Y. Matuoka, M. Kotsugi, T. Kinoshita, Y. Watanabe, K. Tanaka and T. Koshikawa

第13回XAFS討論会、立命館大学 2010年9月6日「ポンプ・プローブ時間分解光電子顕微鏡の開発」 木下豊彦 (招待講演)

SPRING-8 利用推進協議会 先端磁性材料研究会 第4回研究会「スピンドYNAMICSと光誘起磁化過程 ~放射光計測の動向と将来への期待~」 東京総評会館 2010年8月5日「時間分解光電子顕微鏡による超高速磁気応答現象の観測」 木下豊彦 (招待講演)

37th International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics (VUVX 2010), Vancouver 2010年7月11-16日, “Complete assignment of 3D spin axes of antiferromagnetic domains and domain walls of NiO: Combined study of MLD-PEEM and cluster model calculation”, K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, M. Kotsugi, K. Fukumoto, T. Ohkouchi, T.

Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, A. Kakizaki, and T. Kinoshita

Condensed Matter Science for the Next Generation Light Source, Berkley, USA, 2010年5月7-9日, “Temporal and Lateral Resolved Experiments using Photoelectron Emission Microscopy”, K. Fukumoto

第57回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム ナノスケール分光法による顕微評価・解析技術の最前線、2010年3月17日、東海大学、“放射光光電子顕微鏡による微小磁性状態の観察”、木下豊彦 (招待講演)

International workshop on electron spectroscopy for gas-phase molecules and solid surfaces, Matsushima, 12-15 October 2009, “Spectro-microscopy analysis on surfaces and interfaces assisted by synchrotron radiation”, Toyohiko Kinoshita (招待講演)

11-th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure, Nara, 2009年10月6-10日, “Observation of mesoscopic magnetic vortex dynamics by photoemission electron microscopy”, K. Arai, T. Okuda, K. Fukumoto, M. Kotsugi, K. Kodama, T. Ohkouchi, T. Kimura, H. Osawa, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, A. Kakizaki, Y. Otani, and T. Kinoshita

11-th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure, Nara, 2009年10月6-10日, “Absolute assignment of spin domains in NiO by photoemission electron microscopy and cluster model calculation”, K. Arai, T. Okuda, M. Kotsugi, K. Fukumoto, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, A. Kakizaki, A. Tanaka, and T. Kinoshita

International workshop on Synchrotron Facilities for the development of Science and Technology in the Central and Eastern Europe, Bruno, チェコ共和国、2007年11月20日、21日, “Recent Activities and Status of the Spectroscopy Beamlines at SPRING-8”, Toyohiko Kinoshita (招待講演).

15th International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics, Berlin, Germany, 2007年7月30日, "Development of time-resolved Photoelectron Emission Microscope for pump & probe measurements using fs-laser and SR light at SPring-8", T. Kinoshita, K. Fukumoto, K. Arai, T. Matsushita, H. Osawa, T. Nakamura, T. Muro, T. Kimura, Y. Otani.

他 20 件。

〔図書〕(計 1 件)

「磁気イメージングハンドブック」
日本磁気学会編、共立出版、
大嶋則和、小野寛太、木下豊彦他 26 名 2010
年、440 頁。

〔その他〕

ホームページ等
<http://www.spring8.or.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木下 豊彦 (KINOSHITA TOYOHICO)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・主席研究員
研究者番号：60202040

(2) 研究分担者

室 隆桂之 (MURO TAKAYUKI)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・主幹研究員
研究者番号：50416385

大河内 拓雄 (OHKOUCHI TAKUO)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・研究員
研究者番号：00435596
(2009 年より分担者)

小嗣 真人 (KOTSUGI MASATO)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・研究員
研究者番号：60397990
(2009 年より分担者)

大谷 義近 (OHTANI YOSHICHIKA)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号：60245610
(2008 年より連携研究者)

奥田 太一 (OKUDA TAICHI)
広島大学・放射光科学研究センター・准教授
研究者番号：80313120

(2008 年より連携研究者)

小林 啓介 (KOBAYASHI KEISUKE)
独立行政法人物質材料研究機構・共用ビーム
ステーション長
研究者番号：50372149
(2008 年より連携研究者)

松下 智裕 (MATSUSHITA TOMOHIRO)
財団法人高輝度光科学研究センター・制御
情報部門・主幹研究員
研究者番号：10373523
(2008 年より連携研究者)

郭 方准 (GUO FUNGCHUNG)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・研究員
研究者番号：40416376
(2008 年より連携研究者、同年 6 月退職)

大沢 仁志 (OHSAWA HITOSHI)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・研究員
研究者番号：00443549
(2008 年より連携研究者)

中村 哲也 (NAKAMURA TETSUYA)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用
研究促進部門・主幹研究員
研究者番号：70311355
(2006 年 9 月より研究協力者)

福本 恵紀 (FUKUMOTO KEIKI)
東京工業大学・理学部・研究員
研究者番号：20443559
(2008 年より連携研究者)

(3) 連携研究者

分担者より連携研究者に変更したもの
のみ。

(4) 主な研究協力者

新井 邦明 (ARAI KUNIAKI)
東京大学・物性研究所・博士課程

木村 崇 (KIMURA TAKASHI)
九州大学・稲盛フロンティアセンター・教授

松井 真二 (MATSUI SHINJI)
兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・
教授

春山 雄一 (HARUYAMA YUICHI)
兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・
助教