

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：34412

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23246015

研究課題名(和文) 高速顕微スピナノスコープを用いた顕微磁性ダイナミクス

研究課題名(英文) Microscopic Magnetic Dynamics with Stroboscopic Spin Nanoscope

研究代表者

越川 孝範 (Koshikawa, Takanori)

大阪電気通信大学・工学部・教授

研究者番号：60098085

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 38,300,000円、(間接経費) 11,490,000円

研究成果の概要(和文)：これまでに開発を行ってきた高輝度・高偏極・長寿命のスピンプラズマ電子顕微鏡をベースとして、ストロボスコピック法により時間分解磁区像観察が可能な「高速顕微スピナノスコープ」を製作した。そして、垂直磁気異方性を有する磁性多層膜の磁気挙動の動的観察およびその磁性ダイナミクスの基礎特性の観察を行い、新しい磁性材料の開発に資する基礎的な知見を得た。

研究成果の概要(英文)：A stroboscopic spin nanoscope, which enables the time-resolved observation of magnetic domain structures, was developed based on the high-brightness and highly spin polarized low energy electron microscope (SPLEEM) with long life time which has been developed so far. The magnetic behavior of the magnetic multilayers exhibiting perpendicular magnetic anisotropy and the fundamental properties of the magnetic dynamics were investigated using SPLEEM. The results will contribute the future development of the novel magnetic materials.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：電子顕微鏡 表面・界面物性 超薄膜 磁性

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスにおける新しいメモリとして、電流により磁壁が移動する現象(電流誘起磁壁移動効果)を利用したものが注目されている。これは磁場制御より低電流かつ小型化(ナノ化)出来るというメリットを有している。実用的には再現性の高い磁壁移動が必要で、そのための新材料開発、障害となる結晶欠陥制御と磁壁移動のダイナミックスの解明が不可欠である。

研究代表者越川ならびに研究分担者安江らが分担研究者として「JST 先端計測分析技術・機器開発」要素技術開発プロジェクト(2006-2009年度)で開発を進めてきた「高偏極・高輝度・長寿命スピン偏極電子銃」は世界の他機関より圧倒的に高い性能を有している。この電子銃を搭載した「スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡(SPLEEM)」では市販品より4倍以上高いスピン偏極度、300倍以上長いカソード寿命、200倍以上早い画像取得ができ、ビデオより早く(20ms/image)磁区の実時間観察ができる。

世界水準をはるかに超える高性能を持つSPLEEMにも問題点がある。それは、磁性ダイナミックスの観察に必要とされる数10ピコ秒オーダーの時間分解能を持たないということである。放射光を用いた光電子顕微鏡では、ストロボスピック法により磁性ダイナミックスの観察が行われている。SPLEEMを用いて実験室レベルでの高速観察が可能になれば、この分野の研究に大きな貢献をすることができる。SPLEEMではLEEMモードにより結晶欠陥等の像を10nm程度の分解能で得ることが出来る。SPLEEMモードでは同じ視野で磁気特性のダイナミックスが観察できるので、欠陥等による磁壁の移動への影響が直接観察できることになる。そのことにより材料開発ならびに作製上の問題点が浮き彫りにできる。

以上のように、世界に類を見ない高輝度・高偏極・長寿命SPLEEMをベースとして、高分解能「高速顕微スピナノスコープ」を開発することは大きな意味を持っている。それと同時に、電流誘起磁壁移動効果をデバイスに応用するときに必要な垂直磁気異方性の発現過程を詳細に調べることも、新材料開発にとって大きな一助となる。

2. 研究の目的

スピントロニクスを用いたメモリ開発等に必要とされる磁性の顕微ダイナミックスを明らかにするために、高輝度・高偏極・長寿命という特性を持つスピン偏極低エネルギー電子顕微鏡(SPLEEM)をベースにして数10p秒オーダーの高速測定可能な新しい電子顕微鏡「高速顕微スピナノスコープ」を製作する。さらに、電流誘起磁壁移動効果のしきい値電流が低い垂直磁気異方性を有する材料

開発に向けて、磁区形成過程の動的な観察も行う。これらにより、次世代メモリ開発のための新材料開発ならびに磁性ダイナミックスの基礎特性の解明に寄与することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) ストロボスピック法を用いて高速測定を行うために特殊高圧ケーブルならびに試料ホルダを新しく開発する。特に高周波パルス電流を入れることと、微細加工で作製したナノワイヤ状の試料に磁壁を発生させるため磁場をかけることが必要である。高周波を使用するため、外乱によるノイズ等が入らないように設計する。そして、ストロボスピック観察に向けたシステムの構築を行い、「高速顕微スピナノスコープ」を実現する。
(2) 垂直磁気異方性の発現過程の詳細な検討を行う。ここでもSPLEEMを用いて磁性薄膜形成中の磁区構造形成過程の動的な観察を行い、垂直磁気異方性が発現する過程を動的に観察する。そして、理論的な解析も含めて、新材料開発に向けた指針を得ることを目指す。

4. 研究成果

(1) 高速顕微ナノスコープの製作

まず、試料に高周波パルス電流を流すための特殊高圧ケーブルの製作について述べる。本研究で用いるSPLEEMでは、試料に高電圧(20kV)が印加されている。このため、試料に高周波パルス電流を流すときのためには、高耐圧の高周波ケーブルが必要となる。また、SPLEEMの試料マニピュレータのコネクタにあうように専用コネクタの設計・製作も必要である。試料には磁壁移動のための高周波パルス電流を流すだけでなく、磁壁を生じさせるための磁場発生のための電流も流す必要がある。こうしたことを考慮して、ここで新たに製作した特殊高圧ケーブルでは、6本の高周波用同軸ケーブルを内蔵し、全体が高耐圧の絶縁被覆されている。図1(a)は専用コネクタに接続する前のケーブルの写真である。高周波同軸ケーブルが全部で7本内蔵さ

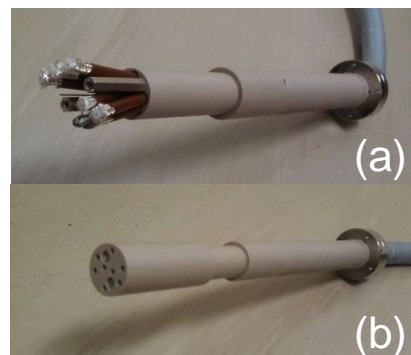


図1 製作した特殊高圧ケーブル。(a)コネクタ実装前、(b)コネクタ実装後。

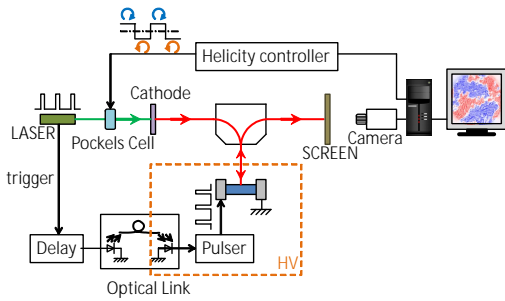


図2 ストロボスコピック計測システム。

れているが、これは中心の1本には他の6本をうまく固定するためのガイドの役割を持たせているためである。つまり、中心の1本は実際には使用せず、残りの6本を使用する。図1(b)は専用コネクタを取り付けた後の写真である。コネクタ内では各ケーブルは50Ωの抵抗で終端されており、標準的な高周波ケーブルと同じインピーダンスとなっている。ケーブルの仕上がり外径は約25mmである。

図2はストロボスコピック法で測定を行うためのシステム構成である。ストロボ観察をするためには、パルス状のスピンの偏極電子ビームを用いる必要がある。スピン偏極電子ビームは、フォトカソードに円偏光レーザーを照射して発生させるので、パルスレーザーを用いれば良い。CoNi積層膜での電流誘起磁壁移動速度は40-80m/sと言われている。SPLEEMの分解能(10-15nm)を考慮すると、パルス幅を1ns以下にしなければならない。ただ、ピコ秒レーザーのようにパルス幅が狭すぎると、信号強度が落ちるので測定に時間がかかってしまう。これらを勘案したうえで、本研究ではパルス幅700ps、繰り返し周波数10MHzのレーザーを導入した。波長はフォトカソードのバンドギャップにあわせて、750nmとなっている。このレーザーパルスをトリガとして、試料にパルス電流を流してストロボ観察を行う。時間分解はレーザーからのトリガ信号に遅延をかけることによって行う。

先に述べたように試料は高電圧になっている。このため、試料にパルス電流を流すためのパルス電源も高電圧の上に置いている。遅延回路からのトリガ信号をパルス電源に受け渡すために、TTL信号をいったん光信号に変換し、光ファイバーで高電圧ラック内まで信号を送る。そして、再びTTL信号に戻してパルス電源のトリガ信号とした。

SPLEEMでは、レーザーの円偏光を切り替えてスピンの向きを反転させた2枚の画像から磁区像を得る。このため円偏光の切り替えも行わなければならないが、これはポッケルスセルにより行う。ポッケルスセルによる円偏光の切り替えと同期してカメラからの画像を取り込む。この時、1枚の画像取得時間は、レーザーパルスの繰り返し周期と比べて非常に長い。したがって、円偏光の切り替えとレーザーパルスの同期を取る必要はない。

以上のように、ストロボスコピック法による高速顕微スピンナノスコープの基本的なシステムの構築を行った。

(2) 垂直磁気異方性発現過程の研究

ここではCoNi多層膜形成過程における垂直磁気異方性の安定化過程に関する結果につき述べる。基板としてはW(110)を用い、CoNi多層膜における磁区構造形成過程の動的な観察をSPLEEMにより行った。

図3はCoNi₂多層膜形成過程のSPLEEM像である。下段は面内磁化成分([1-10]方向)は面直磁化成分([110]方向)である。なお、この系においては[001]方向の面直磁化成分は観察されなかった。1ペアのCoNi₂を形成したときには面内磁化となっている。LEEM像では中央付近にはステップバンチが見られ、ステップバンチ近傍で磁化反転が起こっている様子が分かる。その上に2MLのNiを蒸着すると、面内成分がほぼ消滅し面直磁化が誘起されている。そして1MLのCoを蒸着して2ペア目が完成すると、再び面内磁化に戻る。3ペア目の形成でも同様にNi蒸着により面直磁化が誘起されるが、Coの蒸着に

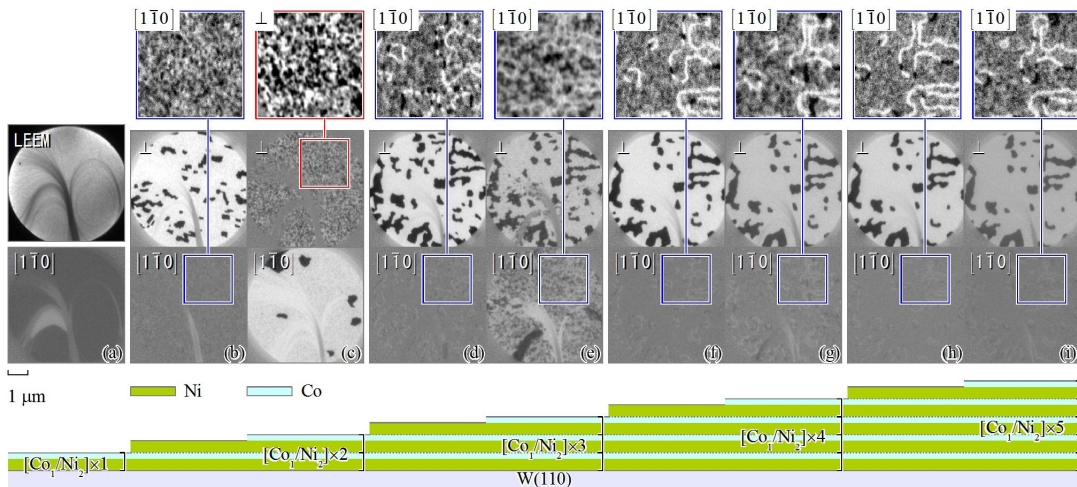


図3 CoNi₂多層膜形成中のSPLEEM像。[1-10]は面内磁区像、[110]は面直磁区像である。最上段は枠囲み領域のコントラスト強調像。

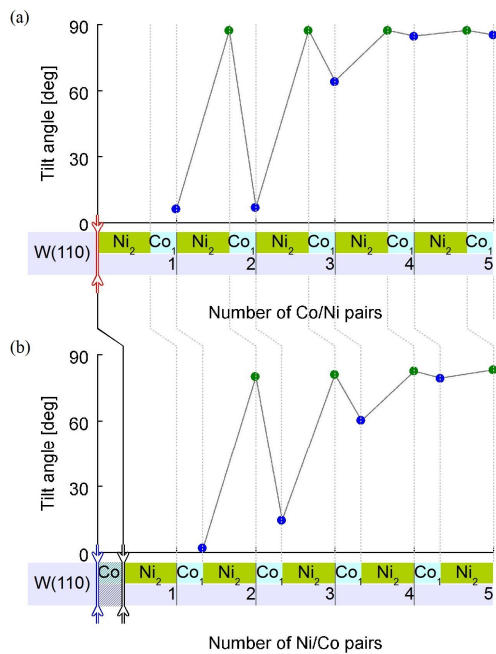


図 4 多層膜形成中の表面から測った磁化の平均傾斜角の変化。(a)CoNi₂ 多層膜、(b)Ni₂Co 多層膜。

よって面直磁化が弱まり面内磁化が現れている。しかし、2 ペア目と比較すると面直成分が多く残っており、完全な面内磁化になっているわけではない。さらに Ni と Co の積層を続けると、Co 蒸着後でも面内磁化はほとんど見られないようになり、面直磁化が安定化される。また、最上段はコントラストを強調した像であるが、積層が進んで面直磁化が安定化されたあとの面内磁区像には、筋状のコントラストが見られる。これは面直磁化の磁区の境界に一致しており、磁壁によるコントラストであると考えられる。CoNi 多層膜形成時の一連の面内、面直磁区構造の変化は、Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を用いた計算機シミュレーションによってよく再現できる。

図 3 の面内磁化成分と面直磁化成分の磁区像から、画像のピクセルごとに磁化の傾斜角を求めることができる。これを画像全体にわたって平均をした平均傾斜角が Ni、Co の蒸着とともにどのように変化するかを示したのが図 4(a)である。ここで傾斜角は試料面から測った角度と定義している。図からわかるように、積層初期は Co 蒸着後に傾斜角が小さくなり、面内磁化を示す傾向があるが、積層とともにその効果が弱まり、4 ペア形成後にはほぼ面直磁化となっていることが分かる。

積層形成初期において、Ni と Co の蒸着により交互に面直磁化、面内磁化が現れている。これに対する基板界面の効果や、積層順序の影響を見るために、Co を先に蒸着した場合についても同様の実験を行った。ただし、Co および Ni の膜厚はそれぞれ 1ML、2ML で先の実験と同じである。図 4(b)に観察された磁化の平均傾斜角の変化を示す。図から明ら

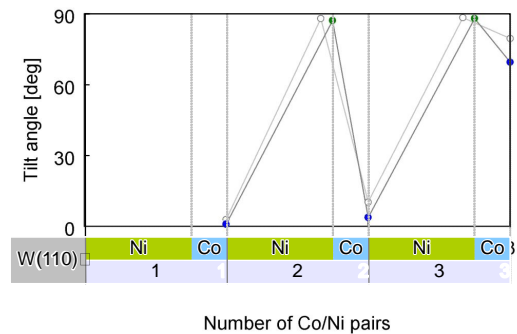


図 5 CoNi₃ 多層膜での磁化の平均傾斜角の変化。

かなように、この場合でも積層初期において Co 蒸着により面内磁化が、Ni の蒸着により面直磁化が誘起されていることが分かる。そして積層に伴う面直磁化の安定化の傾向も非常によく似ている。最初の Co 層分だけ図の横軸を左にシフトすると、傾斜角の変化は (a) の CoNi₂ の場合とほぼ同じになる。この結果から、積層初期における磁化方向の変化は基板の影響を受けているわけではないことが分かる。したがって、Co 層は面内磁化、Ni 層が面直磁化を誘起する傾向があり、さらに Co/Ni 界面が繰り返し形成されることにより面直磁化を安定化する傾向があることが考えられる。

ここまでの結果で、積層初期において Ni 層の形成が面直磁化を誘起する傾向があることが分かった。そこで Ni 層の膜厚を厚くして 3ML にしたときに、面直磁化が安定化される様子の観察を行った。磁化の平均傾斜角の観察結果を図 5 に示す。この場合でも、積層初期において Ni 層形成後は面直磁化、Co 層形成後は面内磁化を示す傾向があり、積層とともに面内成分が小さくなって面直磁化が安定化されることが分かる。この傾斜角の変化は、図 4 に示したものと類似であり、Ni 層の膜厚にはあまり依存しないことが分かった。したがって、積層に伴う面直磁化の安定化には、Co/Ni 界面の形成が非常に大きな影響を及ぼしていると考えられる。

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 7 件)

1. M. Hashimoto, K. Umezawa, T. Yasue and T. Koshikawa, Temperature dependence of growth mode and epitaxial orientation on Au/Ni(111), Surf. Sci., 査読有, 622, 2014, 60-64.

DOI: 10.1016/j.susc.2013.12.004

2. 小島一希, W.A. Dino, 鈴木雅彦, 安江常夫, 工藤和恵, 阿久津典子, E. Bauer, 越川孝範, 笠井秀明, W(110)上のCo/Ni多層膜における磁気異方性の理論的研究, J. Vac. Soc.

Jpn., 査読有, 56, 2013, 139-141.
https://www.jstage.jst.go.jp/article/jvs2/56/4/56_12-PR-073.pdf

3. K. Kudo, M. Suzuki, K. Kojima, T. Yasue, N. Akutsu, W. A. Diño, H. Kasai, E. Bauer and T. Koshikawa, Magnetic domain patterns on strong perpendicular magnetization of Co/Ni multilayers as spintronics materials: II. Numerical simulations, J. Phys.: Condens. Matter, 査読有, 25, 2013, 395005-1-6.
DOI: 10.1088/0953-8984/25/39/395005
4. M. Suzuki, K. Kudo, K. Kojima, T. Yasue, N. Akutsu, W. A. Diño, H. Kasai, E. Bauer and T. Koshikawa, Magnetic domain patterns on strong perpendicular magnetization of Co/Ni multilayers as spintronics materials: I. Dynamic observations, J. Phys.: Condens. Matter, 査読有, 25, 2013, 406001-1-8.
DOI: 10.1088/0953-8984/25/40/406001
5. G. Odahara, H. Hibino, N. Nakayama, T. Shimbata, C. Oshima, S. Otani, M. Suzuki, T. Yasue and T. Koshikawa, Macroscopic Single-Domain Graphene Growth on Polycrystalline Nickel Surface, Appl. Phys. Express, 査読有, 5, 2012, 035501-1-3.
DOI: 10.1143/APEX.5.035501
6. G. Odahara, S. Otani, C. Oshima, M. Suzuki, T. Yasue and T. Koshikawa, In-situ Observation of Graphene Growth on Ni(111), Surf. Sci., 査読有, 605, 2011, 1095-1098.
DOI: 10.1016/j.susc.2011.03.011
7. N. Yamamoto, X.G. Jin, A. Mano, T. Ujihara, Y. Takeda, S. Okumi, T. Nakanishi, T. Yasue, T. Koshikawa, T. Ohshima, T. Saka and H. Horinaka, Status of the High Brightness Polarized Electron Source Using Transmission Photocathode, J. Phys.: Conf. Ser., 査読有, 298, 2011, 012017-1-6.
DOI: 10.1088/1742-6596/298/1/012017

〔学会発表〕(計 68 件)

- すべての学会発表を記載するのは困難なので、ここでは代表的な招待講演のみ記載する。
1. T. Koshikawa, Progress of Spin-Polarized Low Energy Electron Microscopy, 9th Int. Symp. on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices (チュートリアル講演), 2013.12.2-6, Hawaii.
 2. T. Koshikawa, T. Yasue, M. Suzuki, K. Tsuno, S. Goto, T. Nakanishi, G. Jin and Y. Takeda, Spin Polarized Low Energy Electron Microscopy, 2013 NSFC-JSPS seminar on magnetic surface and films

with novel characterization techniques (招待講演), 2013.10.21-25, Shanghai.

3. M. Suzuki, K. Kudo, K. Kojima, T. Yasue, N. Akutsu, W. A. Diño, H. Kasai, E. Bauer and T. Koshikawa, Dynamic Observation of Magnetic Domain Structure of Co/Ni Multilayer with Spin-polarized Low Energy Electron Microscopy, 2013 NSFC-JSPS seminar on magnetic surface and films with novel characterization techniques (招待講演), 2013.10.21-25, Shanghai.
4. T. Koshikawa, T. Yasue, M. Suzuki, K. Tsuno, S. Goto, X.G. Jin and Y. Takeda, Novel development of very high brightness and highly spin-Polarized electron gun with compact 3d spin manipulator for spleem, 19th Int. Vac. Congress & 15th Int. Conf. on Solid Surfaces (招待講演), 2013.9.9-13, Paris.
5. T. Koshikawa, Novel development of very high brightness and highly spin-polarized LEEM and application to spintronics thin film materials, 7th Int. Workshop on High Resolution Depth Profiling (招待講演), 2013.7.8-11, Singapore.
6. 安江常夫, 鈴木雅彦, 越川孝範, 高輝度・高偏極スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡と表面磁性の動的観察, 日本学術振興会ナノプロブテクノロジー第167委員会第69回研究会 (招待講演), 2013.1.10, 東大生研.
7. 越川孝範, 鈴木雅彦, 安江常夫, E. Bauer, 中西彊, 金秀光, 竹田美和, 高輝度・高スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡の開発とスピントロニクス磁性薄膜への応用, 第53回真空に関する連合講演会 (基調講演), 2012.11.14-16, 甲南大.
8. T. Koshikawa, M. Suzuki, T. Yasue, E. Bauer, Y. Takeda and T. Nakanishi, Novel development high brightness and high spin-polarized LEEM and application to spintronics, 16th Int. Conf. on Solid Films and Surf. (招待講演), 2012.7.1-6, Genoa.
9. T. Koshikawa, Dynamic investigation of surface magnetic domains with novel high brightness and high spin-polarized SPLEEM, 10th Asia-Pacific Microscopy Conf. (招待講演), 2012.2, Perth.
10. 越川孝範, 高輝度・高偏極スピン偏極 LEEMを用いたスピントロニクス材料のダイナミック観察, 第31回表面科学学術講演会 (招待講演), 2011.12.15-17, タワーホール船堀.
11. 越川孝範, 高輝度・高スピン偏極低エネルギー

ギー電子顕微鏡の開発とスピントロニクス薄膜材料への応用, 第7回日本表面科学会放射光表面科学部会・SPring-8利用者懇談会 顕微ナノ材料科学研究会 合同シンポジウム (基調講演), 2011.11.25-26, 大阪電通大.

12. 安江常夫, 鈴木雅彦, 越川孝範, 中西彊, 竹田美和, E.Bauer, 高輝度・高スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡を用いた表面研究, 第52回 真空に関する連合講演会 (招待講演), 2011.11.16-18, 学習院大.
13. T. Koshikawa, Dynamic investigation of surface magnetic domains with novel high brightness and high spin-polarized SPLEEM, 28th European Conf. on Surf. Sci. (招待講演), 2011.8.28-9.2, Wroclaw.
14. E. Bauer, M. Suzuki, T. Yasue and T. Koshikawa, Spin-polarized Low Energy Electron Microscopy of Metallic Multilayers, 8th Int. Symp. on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices (招待講演), 2011.5.22-27, Seoul.
15. 越川孝範, ダイナミックLEEM・SPLEEMによる表面研究, 日本顕微鏡学会公開講演会 (招待講演), 2011.5.16-18, 福岡国際会議場.
16. T. Koshikawa, Dynamic observation of $[\text{CoNi}_x]_y$ multi-layers with high brightness, high spin-polarization and long life time SPLEEM, 29th Int. Brand Ritchie Workshop (招待講演), 2011.5.12-15, Matsue.

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.osakac.ac.jp/labs/kosikawa/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

越川 孝範 (KOSHIKAWA, Takanori)

大阪電気通信大学・工学部・教授

研究者番号: 60098085

(2) 研究分担者

安江 常夫 (YASUE, Tsuneo)

大阪電気通信大学・工学部・教授

研究者番号: 00212275