

令和 2 年 7 月 7 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H04920

研究課題名(和文) 時間分解X-FMRイメージングによる交流スピンのダイナミクス解明

研究課題名(英文) Elucidation of AC-spin-current dynamics by time-resolved X-FMR imaging

研究代表者

大河内 拓雄 (Ohkochi, Takuo)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・分光・イメージング推進室・主幹研究員

研究者番号：00435596

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 16,100,000円

研究成果の概要(和文)：次世代の高速・省エネの通信デバイスの開発に資するべく、理論的に非熱的な「スピン流」を信号とするデバイス開発に役立つ「実空間」「実時間」「元素選択的」なX線強磁性共鳴イメージング手法の開発を行った。最も困難とされる、高圧レンズシステム近傍でのマイクロ波入力を想定した試料ホルダを開発し、マイクロ波入力下での光電子顕微鏡観察が可能であることを実証した。実試料での時間分解計測には至っていないが、実用化に向けた方針を切り拓くことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題では、高速・省エネの新規磁気通信デバイスの開発を狙いとして、微細加工された磁性材料における磁化歳差運動の伝搬を「実時間で」「元素選択的に」とらえることを目指した研究開発を行った。これにより、構成元素に特徴的な運動状態を解析するとともに、実空間解析でしか分からない「欠陥による特性劣化を含めた解析」「微小領域の狙い撃ち解析」などもでき、理想系・単一材料系からの見解とのギャップを埋めた知見が得られる。本研究の成果を活かしてスピン運動のピンポイント計測「時間分解X-FMRイメージング法」を世界に先駆けて標準化し、グリーンデバイス開発を世界規模で加速させていきたい。

研究成果の概要(英文)：In this subject, the X-ray imaging system for investigating ferromagnetic resonance which has capabilities of “real-time”, “real-space” and “element-specific” analysis was developed, for the sake of developments in ultrahigh-speed and energy-saving telecommunicating magnetic devices. The tough challenge, development of a special sample holder designed to input microwaves in a narrow space just below an objective lens with high bias voltage of a photoemission electron microscope, was attained. Even though practical dynamic imaging under ferromagnetic resonance precession of the magnetic materials has not been demonstrated yet, guidelines for the extensive studies and applications have been collected through this subject.

研究分野：物性物理、放射光科学、磁性

キーワード：マイクロ波共鳴 強磁性共鳴 光電子顕微鏡 時間分解計測 イメージング 磁気ダイナミクス 放射光

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

次世代の通信デバイスには究極の省エネが求められる。そのような中、記録メディア・メモリなどのデバイスには、不揮発の特徴をもつスピン(磁気)が積極的に活用され始めている。この中で、スピン制御には必ずと言ってよいほど「磁化歳差運動」が伴う。したがって、例えば、歳差運動を最小化することで磁化反転の高速化を実現したり、逆に、共鳴歳差運動に乗せて構造体中の磁化を効果的に反転させたりするなど、歳差運動の特性を理解し、任意に制御できれば、高速でかつエコな磁気デバイスの応用に直結する。特に、磁化の共鳴歳差運動(Ferromagnetic Resonance, FMR)が物質界面を越えて伝搬する現象は「スピン流」の一種であり、名づけるならば「AC(交流)スピン流」と呼ぶことができる。これは正味の電荷の移動を伴わない「純粋スピン流」に分類され、原理上、発熱を伴わないプロセスであるため、エコな次世代通信デバイス開発にとって極めて有力な現象と考えられている。このような特性から、純粋スピン流では電流を遮る絶縁体なども伝導媒体として扱えるため、デバイスを構成する材料の選択肢は広い。従って、材料学的な観点から AC スピン流を発現するデバイスの特性を直接的・サイト選択的に理解することで、AC スピン流デバイスの開発が飛躍的に加速するものと期待できる。

2. 研究の目的

本課題では、SPring-8の時間分解軟 X 線光電子顕微鏡(PEEM)装置等を活用して、X 線磁気円二色性(XMCD)効果で磁化検出する「時間分解 X-FMR イメージング」の測定システムを開発する。これまで間接的に存在が証明されていただけの「AC スピン流」の具体的な特性(振幅・位相・周波数)を、本研究により「元素選択・実時間・実空間」で具体的に可視化、そしてメカニズム解明する手法を確立させ、新方式の磁気通信デバイスの構築指針を獲得する。これまでの研究は、検出のために作り込まれた回路を用いた間接的なスピン運動検証が多く、運動そのものをその目で見た例はほとんど存在しない。本計画で計測システムが確立されれば、AC スピン流が界面を越えて各層を伝搬し、その振幅や位相が変化する過程が明らかとなる。

3. 研究の方法

まずは、SPring-8の軟 X 線ビームラインに設置の光電子顕微鏡(PEEM)装置において、X-FMR イメージング機構を整備する。時間分解 PEEM 観測システム自体は、科研費基盤(S)(H18-22、分担)の課題で構築され、すでに定常的に運用されている。また、MHz 帯の高周波励起における磁気共振運動の測定などにも成功している(T. Ohkochi *et al.* Jpn. J. Appl. Phys. 51 (2012) 128001.)。これは、本システムによって原理上、磁化歳差運動が直接検出できることを示している。本課題ではこれらをさらに発展させ、GHz 級のマイクロ波を、PEEM 装置の困難な制約下(高真空内・高電圧レンズ直下)で導入させる機構を開発する。また、電源・アンプ等の周辺装置も導入してシステムを完成させる。

その後、そのシステムを用いた利用研究に着手する。一つ目のテーマとして、「磁性体/非磁性体/磁性体」をナノレベルで積層した多層膜において、一方の磁性層から FMR 共鳴で発生させた AC スピン流の特性が、他方の磁性層の相対磁化配置によって変調制御できるかどうかを検証する。特に、非磁性 Cu 層の微小スピン運動の選択的解明は世界で例を見ない新規の試みである。さらに発展的な研究として、強磁性体 反強磁性体に流れる AC スピン流を検出・解析する。具体的には、軟磁性体 NiFe 層から反強磁性 NiO サイトに及ぶ AC スピン流による運動などを調べる。

4. 研究成果

(1) 新規 PEEM 装置の導入

本研究をスタートする時期に、本課題と独立の研究資金より新規の PEEM 装置が導入された。これはこれまで利用していた PEEM 装置と基本的なコンセプトが同じで、外部信号の導入など付加的な機能を追加しやすい柔軟な装置構成をもった汎用機である一方、空間分解能が向上してより充実した実験環境が得られる。装置の導入後、間もなくビームラインオプティクスとの同期測定システムを確立し、XAS-PEEM や XMCD-PEEM など基本的な測定が定常的にできる環境が整った。時間分解測定も可能となった。図 1 に、パルスレーザー照射瞬間前後の、Ni₈₁Fe₁₉ マイクロドットの時間分解 PEEM 像を示す。レーザーパルス照射の瞬間にスペースチャージ効果で像が歪む様子が見てとれる。この新規 PEEM 装置について紹介した論文が受理された(T. Ohkochi *et al.* Jpn. J. Appl. Phys. 58, 118001 (2019)) (図 1)。

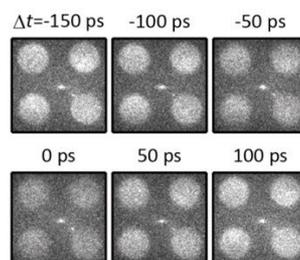


図 1 . 時間分解 PEEM による NiFe 薄膜ディスクの光電子像。

(2) GHz 導入機構の開発

真空中に導入する可搬式小型試料ホルダに GHz 級のマイクロ波を小さな損失で導入する機構は、オリントマイクロウェーブ社とともに設計、開発を進めた。図 2 左の写真に試料ホルダを示す。当初、接着材料からの脱ガスや、接近した対物レンズからの高圧放電を防ぐ平滑化キャップなどの対策が不足していたため、何度か試作を重ねたが、最終的には図 2 右示すように、3 GHz 程度の高周波は最小限の損失なく導入することができた。また、5 GHz の導入にも成功したが、利用した電源の特性の限界があったため、さらに高性能の電源を導入することで良好な波形を導入することができるものと見込まれる。このように、高周波導入はまずまずの成功を収めたものの、実際の XMCD-PEEM 測定の段階では、高周波の電場振動に伴う光電子像の周期的なシフトが微小な磁化歳差運動の検出を困難にしたり、長時間の測定における高圧放電による素子破壊などの問題が完全に解決されないなどの要因により、実際のデータ収集のレベルの成功までには至らなかった。様々な検討をした結果、電子結像型の PEEM よりも例えば透過結像型などの光検出型の顕微鏡装置を導入する手段が有効であるという結論に至った。これにはさらに大型の予算が必要となるので、本課題の成果を礎にさらに大型のプロジェクト形成を目指すとともに、派生して着想した以下のテーマに基づいて研究を進めていった。

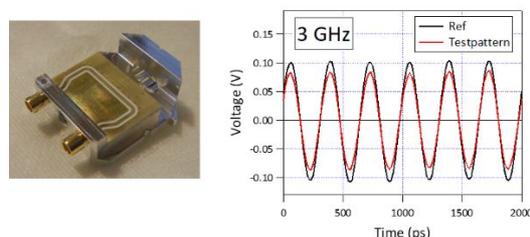


図 2 . (左) GHz 導入型の特特殊 PEEM 用試料ホルダ。(右) テストパターンにおいて 3GHz の高周波を導入した結果。

(3) レーザー励起における磁気ダイナミクスの解析

磁化の歳差運動や高速磁化運動に必要な励起は電気的なマイクロ波に限定されるものではない。最近では、フェムト秒パルスレーザーによる磁化歳差運動や磁化反転励起も注目されており、光誘起が原理的に非熱的プロセスであることからグリーンデバイス開発に直結する。そこで、新しいテーマとして、NiFe や NiCu などで作ったマイクロ円盤薄膜に生成される磁気ボルテックスをパルスレーザーで瞬間消磁し、その後の磁化回復過程を時間分解 PEEM で解析する研究を進めている。ビームラインに既存のパルスレーザーシステムを活用することで実験技術はほぼ確立された。一方で、繰り返し積算型のポンプ-プローブ測定という実験目的にかなった試料構造の作りこみが課題となっているが、残された課題はほぼその一点となり、着実に成功に近づいている。

なお、本課題実施前から継続して行っていた、パルスレーザーで励起した巨大伝搬スピン波を実空間・実時間で解析した研究についての論文も、研究期間内に受理され、出版された(Ohkochi *et al.* APEX 10 (2017) 103002)。結果を図 3 に示す。

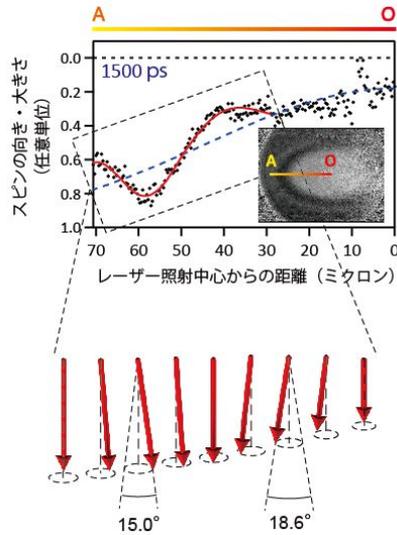


図3 .GdFeCo垂直磁化フェリ磁性薄膜中に、パルスレーザーによって誘起された巨大スピン波。

(4) 垂直磁化ナノ細線中のパルス電流誘起磁壁移動のダイナミクス

本課題のもともとの目的は連続的な GHz 高周波導入であったが、単一パルス電流の導入による細線中の磁壁移動のダイナミクス解析も並行して行った。これは時間分解測定ではなく、PEEM 装置内で in situ でパルスを導入するごとに磁区構造を逐次観察する方式で実験を行ったが、本課題で開発を進めた特殊試料ホルダの技術を利用して、数 10 ns レベルの短いパルスをきれいな波形で導入することができ、磁壁の移動スピードや、それを促進・抑制する要因に関して豊富な知見を得ることができた。この成果も原著論文として発表が完了している(T.Ohkochi *et al.*_Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 023001 (2019))。図4は、NiCu 垂直磁化細線(太さ 1 μm)に導入した磁壁を電流パルスで駆動させた結果である。

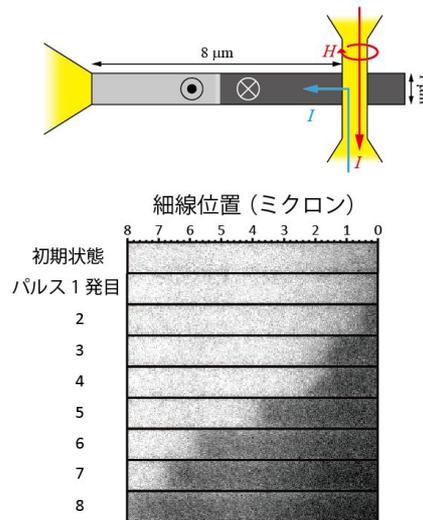


図4 . NiCu 細線中の磁壁のパルス電流駆動の様子。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ohkochi Takuo, Kim Kab-Jin, Kim Sanghoon, Yoshimura Yoko, Tanigawa Hironobu, Ohshima Norikazu, Koyama Tomohiro, Kotsugi Masato, Chiba Daichi, Ono Teruo, Kinoshita Toyohiko	4. 巻 58
2. 論文標題 Real-space and pulse-by-pulse analysis of domain wall creep induced by spin-Hall torque	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 023001 ~ 023001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/aaf628	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohkochi Takuo, Fujiwara Hidenori, Kotsugi Masato, Takahashi Hirokazu, Adam Roman, Sekiyama Akira, Nakamura Tetsuya, Tsukamoto Arata, Schneider Claus M., Kuroda Hiroto, Arguelles Elvis F., Sakaue Mamoru, Kasai Hideaki, Tsunoda Masakiyo, Suga Shigemasa, Kinoshita Toyohiko	4. 巻 10
2. 論文標題 Optical control of magnetization dynamics in Gd-Fe-Co films with different compositions	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 103002 ~ 103002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/APEX.10.103002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Ohkochi Takuo, Osawa Hitoshi, Yamaguchi Akinobu, Fujiwara Hidenori, Oura Masaki	4. 巻 58
2. 論文標題 Present status of photoemission electron microscope newly installed in SPring-8 for time-resolved nanospectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 118001 ~ 118001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab4b12	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 大河内 拓雄
2. 発表標題 放射光電子顕微鏡で見る電子/磁気状態 ~ 顕微XAFSから磁気ダイナミクスまで ~
3. 学会等名 第8回光科学異分野横断萌芽研究会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 *大河内 拓雄、大浦 正樹、大沢 仁志、山口 明啓、藤原 秀紀
2. 発表標題 時間分解顕微分光解析の進展を目指した新しい光電子顕微鏡装置の導入
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 *大河内 拓雄、大浦 正樹、大沢 仁志、山口 明啓、藤原 秀紀、関山 明、木下 豊彦
2. 発表標題 磁気渦構造における磁気エネルギー発現の時間軸解析
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大河内 拓雄、大浦 正樹、大沢 仁志、山口 明啓、藤原 秀紀、関山 明、木下 豊彦
2. 発表標題 静磁・交換エネルギー発現の時間スケールの同定 ～時分割計測のための試料物性の制御～
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大河内 拓雄、大浦 正樹、大沢 仁志、山口 明啓、藤原 秀紀
2. 発表標題 磁気ダイナミクス解析の進展を目指した光電子顕微鏡装置の新規導入
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takuo Ohkochi
2. 発表標題 Present Status of Development and Utilization of Soft X-ray Photoemission Electron Microscopes in SPring-8
3. 学会等名 The 15th Symposium of Japanese Research Community on X-ray Imaging Optics
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takuo Ohkochi, Masaki Oura, Hitoshi Osawa, Akinobu Yamaguchi, Hidenori Fujiwara, Akira Sekiyama, Toyohiko Kinoshita
2. 発表標題 Determination of magnetization alignment speed by observing nucleation process of magnetic vortices
3. 学会等名 The 2019 Magnetism and Magnetic Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Ohkochi, M. Oura, H. Osawa, A. Yamaguchi, H. Fujiwara, A. Sekiyama, T. Kinoshita
2. 発表標題 Direct observation of nucleation process of magnetic vortex structure by means of time-resolved photoemission electron microscopy
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考