

平成 22 年 4 月 15 日現在

研究種目：若手研究(A)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19681013
 研究課題名(和文) 磁性薄膜でのレーザー光電子による偏光可変・多光子磁気二色性と光電子顕微鏡の研究
 研究課題名(英文) Laser photoemission magnetic dichroism and PEEM study of magnetic thin films using variable polarization and multi-photon process
 研究代表者
 中川 剛志 (NAKAGAWA TAKESHI)
 分子科学研究所・物質分子科学研究領域・助教
 研究者番号：80353431

研究成果の概要(和文)：価電子励起したときの光電子磁気二色性を偏光、エネルギーを適切に選ぶことで格段に向上させた。磁性遷移金属では Fermi 準位付近の d 軌道電子が磁性を担っているが、この電子状態と共鳴する軌道へ電子励起するときに特に磁気二色性が大きくなることを明らかにし、二光子励起でも共鳴状態を経ることが大きな二色性の起源となることを示した。これらの現象を光電子顕微鏡と組み合わせることにより、高感度で磁気ドメイン観察が可能となり、かつ超短パルスレーザーの特性を活かして時間分解測定にも成功した。

研究成果の概要(英文)：We have revealed that, with the proper choice of polarization and energy of photons, the magnetic circular dichroism (MCD) asymmetry in the valence band can be largely enhanced. In case of ferromagnetic transition metals, the magnetism is derived from the 3d electrons. We can see large magnetic dichroism for the transition from 3d electrons to the resonance sp orbital, and for two photon photoemission MCD, this resonance transition gives large dichroism. The use of photo electron microscope with the large dichroism enables us to observe magnetic domains with high sensitivity, and to reveal the ultrafast dynamics of the magnetic domains using pulse lasers.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	13,900,000	4,170,000	18,070,000
2008年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
総計	19,400,000	5,820,000	25,220,000

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・ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：ナノ表面科学

1. 研究開始当初の背景
 近年、第三世代放射光の利用とともにスピン-軌道相互作用の強い内殻励起を利用した XMCD-PEEM が盛んに行われている。2005 年には 100nm、100 ps の分解能での実験結

果が得られた(D. Neeb ら J. Phys. Condens. Matter, 17, S1381 (2005))。空間分解能を必要としない時間分解実験はレーザーにより行われ、フェムト秒分解能で、スピン反転・緩和などが観測されている。しかし、フェム

ト秒時間分解能とナノ空間分解能をもった磁気顕微鏡はまだ研究例はない。この理由はレーザー光電子ではスピン軌道相互作用が弱い価電子帯しか励起できないため、磁気構造への感度が不足し、PEEMに応用できなかった。

しかし、我々が見出した閾値付近でのMCDの増大現象を利用することでレーザーMCDによる顕微測定が可能であると考えた。また、これまで主に全電子収量法により研究を進めて来たために、大きなMCDが価電子帯で得られる機構を実験的に十分に解明できていなかった。

2. 研究の目的

Fermi 準位付近の磁気円(線)二色性(Magnetic Circular(Linear) Dichroism, MCD(MLD))をレーザー光電子分光法と入射光偏光可変、時間分解測定を組み合わせる。得られた電子状態情報を時間分解光電子顕微鏡法へ適用し、ナノメートル、フェムト秒分解した測定手法開発および磁気ドメイン観察を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

価電子帯の光電子分光により、磁気二色性のエネルギー依存性、仕事関数依存性、時間依存性を明らかにする。磁気二色性の非対称性向上も検討する。実験は光電子顕微鏡と電子分光装置を組み合わせたシステムを構築して行う。磁気二色性測定はスピン分解することなく、試料の磁性情報が得られる。我々は波長可変単色光源およびレーザーを励起源として磁気二色性の光エネルギー依存、偏光依存性を様々な試料で詳細に測定する。後の述べるようにレーザーのパルス特性を生かした光電子磁気二色性を測定する。

4. 研究成果

(1) 二光子光電子磁気円二色性の発見とその高い非対称度の解明

多光子光電子MCDの測定例はこれまでなく、どのような機構でMCDが発現するのか、どの程度のMCD非対称度が得られるか興味を持たれる問題である。我々は1光子MCDで10%程度の大きな非対称度が得られているNi/Cu(001)にて二光子MCD測定を行った。

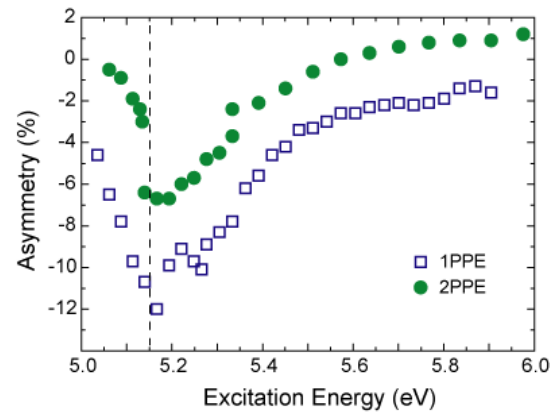


図 1

図 1 に光を垂直入射したときの 1 PPE, 2 PPE の MCD 非対称度のエネルギー依存性を示す。2 PPE でも 1 PPE と同様に光電子閾値付近で大きな MCD が得られ、その大きさは 7% 程度であった。また、光の入射角を 45 度にした場合の MCD による磁化曲線を図 2 に示す。1 PPE では 10% の MCD であるが、2 PPE では 28% もの巨大な MCD が得られた。

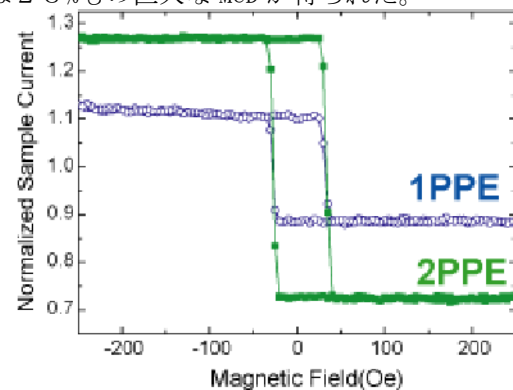


図 2

また、この二光子 MCD 測定の成果は XMCD の多光子過程を考える際の重要な指針となることも期待できる。

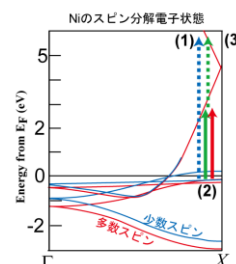
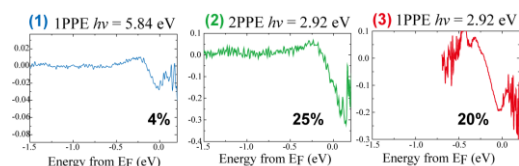


図 3

二光子光電子円二色性の研究は行われていなかった。我々の研究により2光子MCDは十分測定可能であり、光のエネルギー、入射角、偏光を選択することで高い非対称度が得られることを明らかにした。2光子MCDの非対称度は1光子のそれをも凌ぐ場合もあり、最高で30%の非対称度が得られている。

角度分解光電子分光 (ARPES) 測定ではエネルギーを変化させて、MCD非対称度の大きさの起源を詳細に検討した。図3に1PPE, 2PPEの測定結果を示す。測定では1、終状態が同じ、中間状態と終状態のエネルギーが同じになるように光エネルギーを設定した。Fermi準位から2.92eV上にある中間状態を経る2PPEとFermi準位から2.92eV上にある終状態への1PPEでは同程度のMCDが得られた。一方、Fermi準位から5.84eV上にある終状態への2PPEと1PPEでは28%と4%と大きな違いがあることがわかった。これは2PPEの最初の遷移 (Fermi準位上2.92eV) がMCDの非対称度をほぼ決定していると考えられることができる。二光子過程を最初の一光子励起過程のみを取り入れた簡略化したモデルで全電子収量での角度依存測定の結果をよく再現できることも分かっており、この測定例では最初の一光子励起過程がMCD非対称度を定める大きな要因であると結論した。コバルト、鉄など他の磁性物質でも同様であるか検証することは今後の課題である。

(2) 二光子 MCDPEEM による磁気ドメイン観察

これまでレーザー励起によるMCDPEEM観察は我々が行った一光子MCD測定など数例であった。2光子光電子によるMCD-PEEMはこれまで全く測定例がなかったが、上記(1)の成果から可能なことが分かる。図4に2光子MCD-PEEMによる磁気ドメインの観察例を示す。これは世界初の測定結果である。

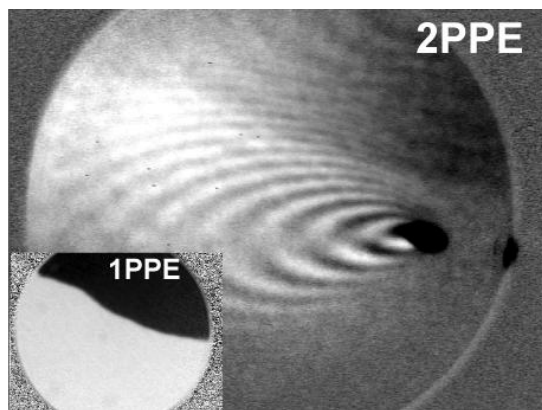


図4

1光子MCDPEEMによる測定結果も左下に挿入

図として示した。2光子では磁気ドメインが若干不鮮明になってはいるものの、1PPEと同じ磁気ドメインが観察できていることが分かる。

(3) 時間分解MCD-PEEM測定

放射光を用いたXMCDは磁気ドメインを高いコントラストで得られることからMCD-PEEMによる顕微分光は広く用いられている。放射光はパルス光なので、その時間構造を利用してパルス磁場を掛けた場合の磁気ドメインの変化を超高速度で観察できる。しかし、その時間分解能は放射光のパルス幅で決まるので高々数十psである。我々はレーザーを用いたフェムト秒の時間分解能で磁気ドメインの測定手法の開発を進めている。

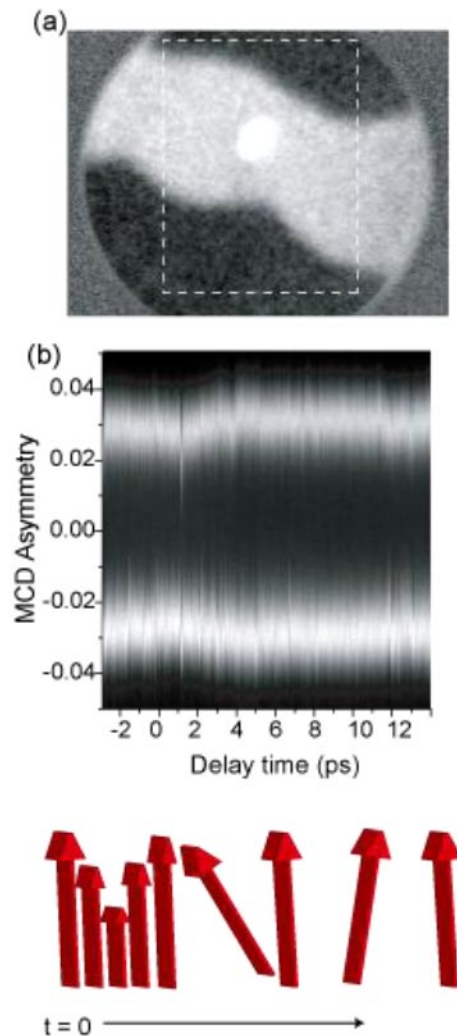


図5 Cs/Ni/Cu(001)磁気ドメインの時間分解測定. ポンプ光は1.55 eV、プローブ光は3.10 eV. (a) $t=0$ psにおける磁気ドメイン. (b) (a)の破線で囲んだ部分のMCD非対称度を遅延時間に対してプロットしたもの。正負 ~ 0.03 の位置は上下の磁気ドメインの非対

称度を表している。

図5にNi薄膜の磁気ドメインに対するポンププローブ実験の結果を示す。用いたレーザーは100fsパルス幅を持ち、ポンプに1.55eV、プローブに3.10eVの光を用いた。その結果、遅延時間 $\Delta t \sim 1$ psにて、上下方向の磁気ドメインで共にMCD非対称度が大きく減少し、再び元の値に戻った。これは電子励起に伴う脱磁化過程とその緩和であり、非常に速い。レーザーによるポンププローブではこのような早い過程を観察できることを示す結果であり、MCD-PEEMによる磁気ドメイン観察の最高時間分解能を達成した。

しかし、磁壁周辺とドメインの内部での応答は実験精度の範囲内で同じであり、顕微の利点はまだない。今後、磁気異方性の小さい物質などポンプ光にたいして磁化の変化が大きいと期待できる薄膜での実験を進める。

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12件)

- ① Yasumasa Takagi, Kyohei Isami, Isamu Yamamoto, Takeshi Nakagawa, and Toshihiko Yokoyama, “Structure and magnetic properties of iron nitride thin films on Cu(001)”, 査読有、*Phys. Rev. B* **81**, 035422 (2010).
- ② 中川剛志、横山利彦、「レーザー励起光電子による磁気円二色性」、査読有、*真空*, **52**, 589 (2009).
- ③ 中川剛志、横山利彦、「レーザー光電子磁気円二色性顕微鏡(総説)」, 査読有、*表面科学*, **30**, 332 (2009).
- ④ T. Nakagawa, I. Yamamoto, Y. Takagi, K. Watanabe, Y. Matsumoto and T. Yokoyama, “Two Photon Photoemission Magnetic Circular Dichroism and Its Energy Dependence”, 査読有、*Physical Review B* **79**, 172404 (2009).
- ⑤ T. Nakagawa, K. Watanabe, Y. Matsumoto and T. Yokoyama, “Magnetic circular dichroism photoemission electron microscopy using Laser and threshold photoemission”, 査読有、*Journal of Physics, Condensed Matter*, **21**, 314010 (2009).
- ⑥ Y. Matsumoto, S. Sakai, Y. Takagi, T. Nakagawa, T. Yokoyama, T. Shimada, S. Mitani and K. Takanashi, “X-ray absorption spectroscopy and magnetic circular dichroism in codeposited C60-Co films with giant tunnel magnetoresistance”, 査読有、*Chemical*

Physics Letters, **470**, 244-248 (2009).

- ⑦ X. D. Ma, T. Nakagawa, Y. Takagi, M. Przybylski, F. M. Leibsle, and T. Yokoyama, “Magnetic properties of self-assembled Co nanorods grown on Cu(110)-(2x3)N”, 査読有、*Physical Review B* **78**, 104420(8pages) (2008).
- ⑧ T. Yokoyama, T. Nakagawa, and Y. Takagi, “Magnetic Circular Dichroism for Surface and Thin Film Magnetism: Measurement Techniques and Surface Chemical Applications (Review article)”, 査読有、*International Reviews in Physical Chemistry*, **27**, 449 (2008).
- ⑨ T. Nakagawa, Y. Takagi, Y. Matsumoto, and T. Yokoyama, “Technical magnetization process in the chemisorption-induced spin reorientation transition of Co/Pd(111) magnetic thin films”, 査読有、D. Matsumura, T. Nakagawa, H. Watanabe, H. Abe, K. Amemiya, T. Ohta, and T. Yokoyama, *Surface Science*, **602**, 1999 (2008).
- ⑩ T. Nakagawa, Y. Takagi, Y. Matsumoto, and T. Yokoyama, “Enhancements of Spin and Orbital Magnetic Moments of Submonolayer Co on Cu(001) Studied by X-ray Magnetic Circular Dichroism Using Superconducting Magnet and Liquid He Cryostat”, 査読有、*Japanese Journal of Applied Physics*, **47**, 2132 (2007).
- ⑪ 中川剛志、横山利彦、「可視・紫外レーザーによる磁性薄膜での光電子磁気二色性(総説)」, 査読有、*日本物理学会誌*, **62**, 522(2007).
- ⑫ T. Nakagawa, T. Yokoyama, and M. Hosaka, and M. Katoh, “Measurements of threshold photoemission magnetic dichroism using ultraviolet lasers and a photoelastic modulator”, 査読有、*Review of Scientific Instruments*, **78**, 023907 (2007) (5 pages).

[学会発表] (計11件)

- ① 閾値光電子磁気円二色性による磁性薄膜の研究
中川 剛志
2010/3/20-23
若手奨励賞講演
日本物理学会第65年次大会 岡山大学
- ② レーザー光電子磁気円二色性顕微鏡の開発と磁性超薄膜研究への応用
中川 剛志、横山 利彦
2010/3/17-19
春季 第57回応用物理学関係連合講演会
東海大学
- ③ レーザー誘起光電子磁気円二色性顕微鏡による磁性超薄膜研究

物性研短期研究会

2010/2/25-26

中川 剛志、横山 利彦

④ Magnetic Circular Dichroism using Laser Photoemission and its application to PEEMJ

2009/12/6-10

T. Nakagawa

7th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices ' 09, Hawaii, USA

⑤ Threshold Photoemission Magnetic Circular Dichroism in Magnetic Thin Films
2009/10/6-10

T. Nakagawa

11-th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICESS-11), Nara, Japan

⑥ Magnetic Circular Dichroism in Valence Band using Laser Excitation

Workshop on Low-Energy Photoemission of Solids using Synchrotron

Radiation (UVSOR, Institute for Molecular Science, Okazaki)

2009/10/3-4

T. Nakagawa, I. Yamamoto, Y. Takagi and T. Yokoyama

⑦ Two photon photoemission magnetic circular dichroism

International Conference on Magnetism (ICM)

2009/7/26-31, Karlsruhe

T. Nakagawa, I. Yamamoto, Y. Takagi, and T. Yokoyama

⑧ Two Photon Photoemission Magnetic Circular Dichroism: Energy and Angle Dependence in Valence Band

The International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (ICMFS)

2009/7/20-24, Berlin

T. Nakagawa, I. Yamamoto, Y. Takagi, and T. Yokoyama

⑨ Ni 超薄膜での二光子光電子磁気円二色性
中川 剛志、山本勇、高木康多、横山利彦

日本物理学会、2009/3/30

⑩ Magnetic Dichroism of Magnetic Ultrathin Films using Laser -PEEM

PEEMLEEM VI, Trieste, Italy

2008/9/11

⑪ Threshold photoemission magnetic dichroism using laser

The 15th International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics

2007/8/3

T. Nakagawa and T. Yokoyama

[その他]

日本物理学会 2010 年若手奨励賞 (領域 9)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中川 剛志 (NAKAGAWA TAKRSHI)

分子科学研究所・物質分子科学研究領域・

助教

研究者番号 : 80353431