日本学術振興会 産学協力研究委員会特別事業

「強力永久磁石の開発と磁区観察先端技術」

磁区観察先端技術班の報告

(2014年3月)

日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会

目次

1.	スピン偏極STM開発技術	山田	豊和	千葉大学大学院	p. 1
2.	STM・AFMによる磁区観察	齊藤	準	秋田大学	p. 33
3.	走査型ホールプローブ顕微鏡	μп	明啓	兵庫県立大学	p. 50
4.	スピン偏極LEEM	越川	孝範	大阪電気通信大学	p. 116
5.	スピン偏極電子ビーム源に関する技術開発	桑原	真人	名古屋大学	p. 145
6.	高輝度・高スピン偏極用フォトカソードの開発	竹田	和美	あいちシンクロトロン光センター	p. 183
7.	透過型電子顕微鏡による磁性観察法	原田	研	株式会社日立製作所 中央研究所	p. 217
8.	スピン偏極走査電子顕微鏡(スピン SEM)	孝橋	照生	株式会社日立製作所 中央研究所	p. 257
9.	SEMにおけるTypeーII磁区コントラストの形成メカニズム	生田	孝	大阪電気通信大学	p. 285
10.	磁区SEMによる電磁鋼板観察	藪木	政男	新日鐵住金株式会社	p. 311
11.	X線磁気顕微鏡	鈴木	基寬	公益地団法人高輝度光科学研究センター	-р. 321
12.	放射光光電子顕微鏡による磁区観察	木下	豊彦	公益地団法人高輝度光科学研究センター	 р. 352
13.	紫外レーザー励起こよる破気円二色性光電子顕微鏡	中川	剛志	九州大学大学院	p. 378
14.	X線磁気円二色性(XMCD)顕微鏡の黎明期	篭島	靖	兵庫県立大学院	p. 397

30

30

スピン偏極STM開発技術

川崎巧, 中島脩平, and 山田豊和*

千葉大学大学院融合科学研究科ナノサイエンス学科、千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33

(Dated: December 18, 2013)

スピン偏極走査トンネル顕微鏡 (STM: scanning tunneling microscopy) は、試料表面・単一原子・ 単一分子・ナノクラスターなど、ナノ構造体や表面の電子・量子スピン構造(磁気構造)を、原子スケー ルの分解能で観察することのできる顕微鏡である。単なる顕微鏡でなく、同時に分光測定が行える。ナノ 材料のフェルミ準位近傍の電子スピン状態を測定できるため、ナノ磁性材料の電気伝導測定に最適な手法 の一つであり、次世代ナノスピントロニクスデバイス創成および評価のための強力な手法となっている。 本論文では、このスピン偏極 STM 装置の作成・測定技術のノウハウに関して、これまで報告されてこ なかった測定・開発の注意点や詳細をあえて記述し、今後のスピン偏極 STM 研究の発展・普及を願う。

	Contents		$\mathbf{Acknowledgments}$	3
I.	はじめに	1	References	3
II.	STM	2	I. はじめに	
III.	原理	2		
	A. 分光	2	情報は現在の我々の生活において欠かすことのできな	よい
	B. 電子と磁性	3	ものである。メール、画像、音楽、データ、動画など、情	「報
	C. スピンイメージング	4	は様々な形で普及し、これを操るものとしてパソコン、	タ
	D. スピンコントラストの注意点	7	ブレット、スマートフォンなどがある。全世界でやり取	文り
	E. スピン偏極度ベクトルと磁気モーメントベク		される情報量は今後10年で20倍以上に増加すると予測	しさ
	トル	7	れ、情報産業は非常に魅力的である。この膨大な情報の)記
			録・制御を可能としているのか磁石である。磁石の NS	,極
IV.	開発技術	7	を利用して、2進法「1」「0」で情報は記録される。/	\ <u> </u>
	A. 測定準備・手順	8	トナイヘクは個小なフノ酸石の集合である。酸石の回さ	: と) つ
	1. 超高真空装置・注意点	8	読み取るために燃気センサーが使われる。これもまた2 の磁石の間を流れるスピン恒振雪流を利用する	ر•:
	2. アプローチ・注意点	8	このように合日の社会に広く並及している磁気情報ラ	デバ
	B. 装置構成	9	イスに求められる事け 持続可能社会宝珥に向けて ト	- n
	C. 針・試料ステージ&粗動機構	10	高効率・省エネ・省資源化を実現する新たたデバイスの	、?)開
	D. 針交換機構および加熱・スパッタ・蒸着	12	発である。磁石およびデバイスの微小化はそのための有	动
	E. 除振機構	14	な手法である。2030 - 2040 年頃の磁気デバイスの大き	おさ
	F. 電流ノイズ	14	は 2-3nm となることが予測されている。このような微	如小
	G. 冷却機構	16	な磁性体の電気特性・スピン伝導特性・磁気(量子)特	针性
	H. 超電導コイル開発	17	を探るには、原子レベルの分解能でナノ磁性体を観察	ι,
			直接その場でフェルミ準位近傍の電子スピン状態および	炻
V .	磁性探針・作成注意点	20	導を測定できる手法が求められる。この双方を兼ね備え	こた
	A. 磁性膜/W 探針	21	ものがスピン偏極走査トンネル顕微鏡(STM)およひ	ド分
	B. 磁化変調モード用探針	23	光法である [1, 2]。	
	C. 半導体磁性探針	23	試料表面の表面形状凹凸像と、その場所での磁気イメ 、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、	<
3 7 7		0.4	シンク像を原子分解能で同時に観祭し、単一原子毎のス	くビ
V1.	幽性試科・作成注息只	24	ン価極度ヘクトルを直接視見的に観祭することのでさな ピン原語 CTM は、スピン物性研究の空振の毛汁の一く	こと
VII	宁雪 冻 エ 二 じ ・ 測 宁 注 音 占	26	こく価極 SIM は、人にく物性研究の先極の十伝の一つ	∠ך ≁#
v 11.	と 电加 て 一 ト・ 別 と 注 忌 点	20	レスより。ヘビン価値 51 M を用いた研究が、平俗的に 奥久国で始まったのけ 91 世紀に入ってからである 1(- 巴 000
VIII	分光測定·注音占	27	年に Wiesendanger 博士が CrO。 探針を用いた最初のは	990 6里
v 111.	A 定距離モード	27	$- \gamma c$ with schular ger (日本) Clo_2 (本) c 元 $ c$ 取 の $ m$ を発表した この際け スピン依存成分を探針試料間間	「離
	B 距離変動モード(ロックインアンプ使用磁気	21	で検出するというものであり(定電流モード)、原子分解	工能
	イメージング)	28	はなかった。2000年になり同博士のグループが磁性と	:非
	C. 定量測定:定距離モード	$\frac{-0}{29}$	磁性の探針で W(110) 上の Mn 膜の原子ラインの起伏が	四
		_0	なって観察されたことから、初めてスピン偏極 STM に	こよ
	_		る原子レベルの磁気分解能が実証された。2001-2003年	戸こ
			かけて、ドイツの Wulfhekel 博士 (当時マックスプラン	1ク

*Electronic address: toyoyamada@faculty.chiba-u.jp

1

研究所、2013年現在カールスルーエ工科大学)、アメリカ

の Smith 博士 (オハイオ大学)、オランダの山田 (当時ナイ メーヘン大学、2013年現在千葉大学)、東芝の中村博士、 IBM の Heinrich 博士達がスピン偏極 STM の開発に相次 いで成功し国際的に研究を開花させた。2005年頃までに スピン偏極 STM の概要・各種測定モードについての基礎 ができ、2006年に最初のスピン偏極 STM の国際学会が 開催された。これまでに発表された主なスピン偏極 STM に関する研究は、文献 [3-49] を参照いただきたい。また、 2005 年に Microscopy Research and Technique 誌の 66 巻 p.61~p.116 に特集されたスピン偏極 STM に関する研究 のレビューや [34-38]、2009 年に Wiesendanger 教授によ り発表されたレビュー [1] も全体像を知るうえで参考にな ると思われる。スピン偏極 STM を用いて様々な磁性体の 原子スケールでの振る舞いを探る動きが加速してきている が、研究されていない分野はまだまだ豊富にあり、新たな 物性発現の可能性が秘められている。

特に、ナノ磁性体(薄膜 [24]、単一原子 [41]、単一分子 [28-30, 32, 33]、ナノ磁石 [31])の磁気状態(電子スピン状 態)を、高精度で測定するためには極低温・超高真空環境 が必要となる。STM 本体は数 cm の大きさであるが、超高 真空、除振、液体ヘリウム冷却等、様々な測定ニーズに伴 い装置は巨大化し、装置の開発・購入経費は高額となるだ けでなく、装置のランニングコストも増大していく。特に 極低温を実現するため利用されるヘリウムは高価である。 装置の巨大化・複雑化は、オペレーションの難易度を上げ ることになり不用意な事故のリスクとなる。一人あるいは し人で装置を安定に低負担でオペレートでき、ランニング コストも極力抑えたコンパクト・高性能な装置がナノ磁性 体の研究推進および普及には必要不可欠と考える。本論文 では、これまで研究室内でしか伝承されず、外部には発表 してこなかった、超高真空・極低温・高磁場・スピン偏極 STM を開発するためのノウハウを記述する。

II. STM

走査トンネル顕微鏡は、物質表面原子配列を直接視覚 的に観察できる顕微鏡として、1980年初頭に Binnig 博士 と Rohrer 博士により発明された。その業績より 1986年 にノーベル物理学賞が両博士に授与された。走査トンネル 顕微鏡の原理はいたって簡単である。非常に鋭い針で、物 質表面をなぞって形状を探る顕微鏡と考えてもらえれば良 い。ただし、STM で検出するのは、探針先端の原子と試 料物質との間を流れる電流である。

STM の測定機構を簡単に図1を用いて説明する。探針 を試料に約0.5-1.0nm まで接近させる。試料・探針間に電 圧(µV-3V程度)を印加することで探針・試料間のギャップ をトンネル遷移して流れる電子(トンネル電流と呼ぶ)を 検出する。このため探針および試料は導電性に限られる。 無機・有機物質のうち金属や半導体の特性をもつ物質が測 定対象となる。トンネル電流は探針・試料間距離の減衰に 対して指数関数的に増加するため、pm レベルの起伏を検 出できる。電流ノイズが低いほど、高精度で表面形状を検 出できる。原子起伏は通常数 pm 以上あるため原子イメー ジングが可能となる。

図1で示すように具体的には検出するトンネル電流(数 fAから数nA)を10⁶~10¹⁰倍に増幅し電圧信号に変換す る。通常のSTMによる表面像測定は定電流モードで行わ



FIG. 1: 走査トンネル顕微鏡 (STM)・概略図

れる。定電流モードはトンネル電流が一定となるように (例えば 100pA と指定)、フィードバック回路と z ピエゾ 素子の伸縮を利用して探針試料間距離を制御する仕組みで ある。例えば、今、針先端が試料表面の1個の原子の上に あるとする。図1の x-y ピエゾ素子に電圧をかけて針先端 の位置を少し動かす。すると針先端はその原子と隣の原子 の間の溝にくる。溝の位置では、探針試料間距離は広がる ため、トンネル電流量は100pA以下となる。定電流モー ドではトンネル電流を一定にするため、zピエゾ素子に電 圧をかけ針先端位置を試料へ近づけ距離を小さくしトンネ ル電流を増やし 100pA にする。x-y ピエゾ素子に電圧を かけ伸縮させることで針先端を試料表面上で走査し、各位 置でトンネル電流が一定となるようにzピエゾ素子に電圧 をかける。zピエゾにかかる電圧変化を画像化したものが STM 像である。図1に示すようにこの手法により比較的 容易に原子像が測定できる(図1はグラファイト(0001) 表面の炭素原子のカゴメ状配列を示す)。

III. 原理

STM 探針を磁性探針とし、探針試料間に流れるトンネ ル電流をスピン偏極させる事で、磁性試料表面のスピン 分布を測定するのがスピン偏極 STM である。スピン偏極 STM を用いた磁気イメージングを理解するためには、ま ず STM による分光測定を理解する必要がある。

A. 分光

図2にSTM分光の概略図を示す。STM分光は、試料 のフェルミ準位近傍(±3eV)の局所電子状態密度を検出 する。異なる物質間で電気がどのように流れるかは、物質 の最外殻の電子軌道のフェルミ準位近傍の形(=電子状態 密度分布)で決まる。つまり、STM分光を用いることで、 例えばナノ材料の金属・半導体・絶縁体判定など電気伝導 評価を正確に高精度で行うことができる。

分光測定では、定電流モードと異なりフィードバック回 路をオープンにして行う。つまり、分光測定中は探針試料 間距離を一定とする(フィードバック回路を切るため定電 流モードに比べ、一層の除振対策および電流ノイズ対策が 必要となる)。分光測定は単純である。テスターで電流電 圧特性を測定するのと同じである。図2(a,b)が示すように 試料探針間距離 (z) を固定した状態で (図2では z = 1nm で固定)、試料への電圧を –V から +V まで変えた際のト ンネル電流の変化を測定する。試料に負の電圧をかけた際 は、図2(a)のように試料のフェルミ準位から探針の非占有 状態へ電子は流れる。図 2(a) の針電子状態はフラットな ので (s 電子バンド)、トンネル電流は -V から 0V にかけ て変化させた際は図2(c)のように指数的に減衰していく。 次に 0V から +V へ電圧をかけていく。試料に正の電圧を かけた際は、図2(b)のように探針のフェルミ準位から試 料の非占有状態へ電子は流れる。今、図2(b)の試料電子状 態は局在した状態のピーク(3d電子バンドなど)があると する。すると、この状態ピークのあるエネルギー位置では トンネル電流がより多く流れる。結果として、トンネル電 流の電圧による変化をプロットすると図 2(d) のように正 電圧側でトンネル電流は指数的に増加するとともにピーク 位置での電流量の増大を瘤として検出できる。通常、この 得られたトンネル電流の電圧依存曲線を、I(V)曲線とよ ぶ。これを電圧で一回微分すると微分トンネル電流曲線と なる (図 2(e))。 dI/dV 曲線とよぶ。 図 2(e) が示すように、 dI/dV 曲線は電子状態と指数関数の積に比例する:dI/dV ∝(電子状態)(指数関数)。dI/dV 中に含まれる「指数関数」 について説明する。これはトンネル確率関数(T)と呼ば れ、式で記述すると:

$$T = a_{+} \cdot \exp\left[-b\sqrt{\phi - V_{s}/2}\right] + a_{-} \cdot \exp\left[-b\sqrt{\phi + V_{s}/2}\right]$$

となる [68]。なお、 $b=2\sqrt{2m/\hbar^2}z\simeq 1.02z$ Å である [69]。 m: 電子質量, ħ: プランク定数/2π, V_s: 試料電圧。探針試 の仕事関数(典型的に約4eV)。a+ とa- は、それぞれ正 と負電圧側の比例係数である。この式からわかるように、 トンネル確率関数は距離 2 の増加に対して減り、試料電圧 V。の増加に対して増える。dI/dV 曲線を指数関数で規格 化した (dI/dV)/T 曲線を測定することで、試料のフェル ミ準位近傍の電子状態が直接測定できる。この I(V) 曲線 および dI/dV 曲線の見方であるが図 2(c-e) が示すように、 0Vをフェルミ準位、正電圧側が非占有状態、負側が占有 状態に対応すると考えていただければよい。このようにし て STM 分光を用いることでナノ材料のフェルミ準位近傍 の電子軌道状態を正確に知ることができ、新たなナノエレ クトロニクスデバイスのための材料評価の最適な手法の一 つとなっている。

B. 電子と磁性

STM の探針と試料の間で遷移する電子は、素電荷 $-e = -1.602 \times 10^{-19}$ Cを持つだけでなく、固有の磁気モーメントを持った磁石である。スピン磁気モーメントは、 $\mu_s = -g_s \mu_B \vec{s} (g_s = 2.0023)$ 、通常 $g_s = 2$ として差し支えない)と書き表せる。 s_z の固有値は ±1/2 であるから、電子のスピン磁気モーメントは 1 μ_B となる [50]。電子のスピン 状態は spin-up(↑)と spin-down(↓)の2種類であるので、



FIG. 2: STM 分光モード・概略図。(a) 試料に負電圧印加の際 のトンネル電流の流れ。(b) 試料に正電圧印加の際のトンネル電 流の流れ。(c)-V から 0V へ電圧を変化させていく際のトンネ ル電流の変化 (I(V) 曲線)。(d)-V から +V へ電圧を変化させ た際のトンネル電流の変化 (I(V) 曲線)。(e)I(V) 曲線(d) を電 圧で微分した dI/dV 曲線。 $dI/dV \propto$ (電子状態)(指数関数)。

通常、 s_z の固有値をとってスピン変数を $\sigma = \pm 1/2$ と表 す。スピン関数 $\chi(\sigma)$ を、2 種類のスピン状態それぞれに 対応するスピン関数 α 、 β を用いて表せば、 $\alpha(1/2) = 1$ 、 $\alpha(-1/2) = 0$ 、 $\beta(1/2) = 0$ 、 $\beta(-1/2) = 1$ となる。スピン 関数は2 個のスピン変数に対応した値しか持たないので、

$$\alpha \left(\begin{array}{c} 1/2 \\ -1/2 \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} 1 \\ 0 \end{array} \right), \beta \left(\begin{array}{c} 1/2 \\ -1/2 \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} 0 \\ 1 \end{array} \right)$$

と記述できる。この時、スピン演算子を

$$s_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, s_y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, s_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

と書き表わせば、 $s_z \alpha = \frac{1}{2} \alpha$ 、 $s_z \beta = -\frac{1}{2} \beta$ が満たされの で、スピン関数 α は s_z の固有値が +1/2 の spin-up 状態、 スピン関数 β は s_z の固有値が -1/2 の spin-down 状態を あらわすことが確認できる。昇降演算子

$$s_{+} \equiv s_{x} + is_{y} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, s_{-} \equiv s_{x} - is_{y} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$$

を用いれば $s_+\alpha = 0$ 、 $s_-\alpha = \beta$ 、 $s_+\beta = \alpha$ 、 $s_-\beta = 0$ であ る。 $s^2 = s_x^2 + s_y^2 + s_z^2 = \frac{1}{2}(s_+s_- + s_-s_+) + s_z^2$ となるた め $s^2 \alpha = \frac{1}{2} \alpha + (\frac{1}{2})^2 \alpha = \frac{3}{4} \alpha$ 、 $s^2 \beta = \frac{1}{2} \beta + (\frac{1}{2})^2 \beta = \frac{3}{4} \beta$ と なり、 s^2 の固有値は $s(s+1) = \frac{3}{4}$ となる。 スピン関数 α 、 β は、スピンが z 方向を向いているとし

スピン関数 α 、 β は、スピンが z 方向を向いているとし て定義したので、 s_z の固有値は $\pm 1/2$ となる。しかし、ス ピン偏極 STM 測定では、探針・試料のスピンは任意の方 向を向いていて構わない。そのため、任意の方向のスピン 状態を考える。任意の方向の単位ベクトルを

$$e_x = \sin\theta\cos\phi, e_y = \sin\theta\sin\phi, e_z = \cos\theta$$

としよう。 θ はz軸からの角度、 ϕ はx軸からの角度とする。スピン演算子 \vec{s} の \vec{e} 方向の成分は、その内積 $\vec{e} \cdot \vec{s}$ である。

$$(\vec{e} \cdot \vec{s})\chi = (e_x s_x + e_y s_y + e_z s_z)\chi = \lambda\chi$$

の方程式を解く。スピン関数 $\chi = \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix}$ として上式を展開すれば、

$$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta e^{-i\phi} \\ \sin\theta e^{+i\phi} & -\cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} = \lambda \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix}$$

となる。この式が意味のある解をもつためには $\begin{vmatrix} \cos \theta - 2\lambda & \sin \theta e^{-i\phi} \\ \sin \theta e^{+i\phi} & -\cos \theta - 2\lambda \end{vmatrix} = 0 を満たさなくてはな$ $らない。その結果、<math>4\lambda^2 - (\cos^2 \theta + \sin^2 \theta) = 0$ となり、 $\lambda = \pm 1/2$ を得る。 $a_2 \ge a_1$ の比をとってやれば、

$$\lambda = +1/2 \rightarrow \frac{a_2}{a_1} = \frac{1 - \cos\theta}{\sin\theta e^{-i\phi}} = \frac{\sin(\theta/2)e^{i\phi}}{\cos(\theta/2)}$$

$$\lambda = -1/2 \rightarrow \frac{a_2}{a_1} = \frac{-1 - \cos\theta}{\sin\theta e^{-i\phi}} = \frac{-\cos(\theta/2)e^{i\phi}}{\sin(\theta/2)},$$

を得る。スピン関数の規格化を考慮して $|a_1|^2 + |a_2|^2 = 1$ 。 その結果、

$$\lambda = +1/2 \rightarrow \chi = \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(\theta/2) \\ \sin(\theta/2)e^{i\phi} \end{pmatrix}$$

$$\lambda = -1/2 \rightarrow \chi = \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin(\theta/2) \\ -\cos(\theta/2)e^{i\phi} \end{pmatrix}$$

となる。仮に、 $\theta = \pi/2$ 、 $\phi = 0$ とおけば、スピンは x 軸 方向を向いているスピン状態である。すると、

$$\chi = \begin{pmatrix} 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

と表すことができる。式からわかるように、x方向を向いたスピン状態は、spin-up状態 (α)と spin-down 状態 (β)が同じ重みで合わさったことと同じである。

ここで、スピン偏極度ベクトル $\vec{P} = (P_x, P_y, P_z)$ は、 $\vec{P} \equiv \langle \chi | 2\vec{s} | \chi \rangle = 2 \langle \chi | (s_x, s_y, s_z) | \chi \rangle$ と定義される。 上式の χ を代入して計算すれば、

$$P_x = 2\cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{\theta}{2}((e^{i\phi} + e^{-i\phi})/2) = \sin\theta\cos\phi,$$

$$P_y = 2\cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{\theta}{2}i((e^{-i\phi} - e^{i\phi})/2) = \sin\theta\sin\phi,$$

$$P_z = \cos^2\frac{\theta}{2} - \sin^2\frac{\theta}{2} = \cos\theta$$

となり、スピン偏極度ベクトルの方向は、任意のスピン状態の方向と同じことが分かる。

また、スピン偏極度ベクトルの大きさは、各エネルギーでの spin-up と spin-down が入る多数と少数スピン状態密度の差を和で割った形で定義される。つまり、 $|\vec{P}| = (\rho^{maj} - \rho^{min})/(\rho^{maj} + \rho^{min})$ 。

C. スピンイメージング

スピン偏極 STM の原理は、このスピン偏極度ベクトル *P*を用いて説明できる。試料と探針が磁性体である場合、 それらの電子状態はスピン偏極している。

図 3 はスピン偏極 STM の原理を示す。図 3(a) は試料 と探針の磁気モーメントベクトルの向きが平行な場合で ある。右側に、探針と試料の電子スピン状態を示す。少 数スピンと多数スピンバンドがある (フェルミ準位までの 電子状態数の多さで定義)。針側では少数スピンバンドに spin-up(α)が、多数スピンバンドに spin-down(β)が入る とする。また、ここでは理想的に探針のフェルミ準位のス ピン偏極度は 100%とする (つまり α しかない)。平行な場 合(図 3(a))、試料の少数・多数スピンバンドに探針と同 様にそれぞれ α と β が入る。この場合のトンネル電流を 考える。

トンネル現象は、探針と試料の間に真空(絶縁物)が挿 入された際、その表面(界面)で生じる現象である。導電 性物質のバルク中では、電子はブロードな電子バンド中を 自由に動いている。しかし表面では、対称性の破れから特 定のエネルギー準位 (=表面状態ピーク位置) にしか存在 できない。バルク中の自由な電子が真空へ抜け出るには、 表面状態ピークのエネルギーをもたなくてはならない。あ たかも、表面には水道の蛇口のようなバルブがあると考え ればよい。磁性体の場合、電子はαとβに分かれる。そ れぞれの電子にバルブがある。図3(a)の探針側を見ると、 フェルミ準位の α のバルブは電子 3 個分開いており、 β の バルブは閉じている。一方、試料側のバルブをみると、α のバルブは電子3個分開いており、βのバルブは1個分開 いている。探針と試料のそれぞれからでてきた電子は真空 (絶縁物)中で重なりあう。その結果、真空中での存在確 率(トンネル遷移電子量)は、3×3+0×1=9個とかけ る。但し、トンネル遷移過程ではスピンの向きは反転しな いとする。つまり、 $\alpha \to \alpha$ 、 $\beta \to \beta$ しか遷移できない。

つぎに、反平行な場合(図 3(b))を考える。探針の状況 は変わらない。試料の磁石の向きが変わる。つまり試料の 多数スピンバンドと少数スピンバンドが反転するため、試 料の多数スピンバンドに α が、少数スピンバンドに β が入 る。その結果、試料側は、 α のバルブは電子1個分開き、 β のバルブは3個分開く。この場合の真空中での存在確率 (トンネル遷移電子量)は、 $3 \times 1 + 0 \times 3 = 3$ 個となる。 図 3(a,b)の磁気抵抗は(9-3)/(9+3)=50%となる。また この時の針のスピン偏極度は(3 - 0)/(3 + 0)=100%、試 料のスピン偏極度は(3 - 1)/(3 + 1)=50%となる。 このようにして、磁性探針と磁性試料の間のトンネル 電子遷移量は、探針と試料のスピン偏極度ベクトルの向 き(それぞれ \vec{P}_t 、 \vec{P}_s と定義する)に依存し、磁気抵抗量 (電子スピン遷移量)はスピン偏極度ベクトルの大きさに 依る。この関係を式で書くと、

$$I \propto I_o (1 + \vec{P_s} \cdot \vec{P_t})$$

または

 $dI/dV \propto dI_o/dV(1+\vec{P_s}\cdot\vec{P_t}) = dI_o/dV(1+|\vec{P_s}||\vec{P_t}|\cos\theta)$

となる。トンネル電流中のスピン成分は、試料のスピン偏極度ベクトルと探針のスピン偏極度ベクトルの内積に比例 する。また、スピン偏極度ベクトルの大きさは、*dI/dV*の 非対称性から求まるといわれている。つまり、

$$dI/dV_P = dI_0/dV(1+|\vec{P_s}||\vec{P_t}|)$$

$$dI/dV_{AP} = dI_0/dV(1 - |\vec{P_s}||\vec{P_t}|)$$

とかけるなら、

$$\frac{dI/dV_P - dI/dV_{AP}}{dI/dV_P + dI/dV_{AP}} = \frac{2|\vec{P_s}||\vec{P_t}|}{2}$$

となり、 $|\vec{P}_s|$ が得られる。ここで dI/dV_P は平行な場合で のdI/dV、 dI/dV_{AP} は反平行な場合でのdI/dVを意味 する。しかし、ここで注意しなくてはならない。 dI_0/dV が、平行と反平行の場合で同じであれば上式は成立する が、 $dI_0/dV_P \neq dI_0/dV_{AP}$ である可能性が高いのである。 なぜなら、分光測定を行う際まず探針試料間距離を固定 するのだが、磁性試料の場合この距離が平行・反平行で変 化してしまう $(z_P \neq z_{AP})$ からである。 $dI/dV \propto (電子状$ 態)(指数関数)であり、距離 (z)が変われば指数関数の項 $(T \propto exp(-2\kappa z))$ が変わりdI/dV 値に影響する。つまり、

$$\frac{dI/dV_P - dI/dV_{AP}}{dI/dV_P + dI/dV_{AP}} \neq |\vec{P_s}||\vec{P_t}|$$

となってしまう (実例は、文献 [24])。そのため、次式のように *dI/dV* からこの距離依存性を取り除くことで、試料のスピン偏極度ベクトルの大きさが求まる。

$$\frac{(dI/dV)/T_P - (dI/dV)/T_{AP}}{(dI/dV)/T_P + (dI/dV)/T_{AP}} = |\vec{P_s}||\vec{P_t}|$$

その際、探針のスピン偏極度ベクトルの大きさ ($|\vec{P}_t|$) が分からなくては試料の磁石の大きさ ($|\vec{P}_s|$) は求まらない。

このようにして、トンネル電流を測定することでスピン 偏極度ベクトル (大きさ、方向) が分かる。図 3(c,d) に図 3(a,b) の場合で測定した分光曲線の結果を示す。今、探針 のフェルミ準位には α しかないとする。つまり、 $|\vec{P}_t|$ =100 %である。実際には、そのような探針は発見されていない が、ここでは説明しやすいのでこのようにする。平行な場 合では試料の少数スピンバンド、反平行な場合では多数ス ピンバンドをとらえる。 $dI/dV \propto dI_o/dV(1+\vec{P}_s\cdot\vec{P}_t)$ であ るので、平行な時は $dI/dV_{AP} \propto dI_o/dV(1+|\vec{P}_s||\vec{P}_t|)$ 、反 平行な時は $dI/dV_{AP} \propto dI_o/dV(1-|\vec{P}_s||\vec{P}_t|)$ 、反 の平行と反平行の I(V) および dI/dV 曲線の差をスピン コントラストと呼ぶ。

注意すべき点は、スピン偏極 STM による磁気イメージ ングでは、スピンコントラストは、図 3(d) からも想像が つくように電圧によって変わることである。図 3(d) の例 では 0V 付近で dI/dV_P と dI/dV_{AP} で差がなくなってし まっているためコントラストは消えてしまうが、磁石でな くなったわけではない。スピン偏極した多数または少数ス ピン電子状態バンドがあるエネルギー位置で、コントラ ストが見える。またトンネル電流中に含まれるスピン成分 は通常数%程度である。このため測定装置の電流ノイズは 1pA 以下にすることが望ましい。

具体的な STM スピンイメージングについて図4を用い て説明する。矢印はスピン偏極度ベクトルの向きを示す。 磁性探針を走査しながら、試料表面の各位置で、高さの情 報 (フィードバック閉) と I(V) または dI/dV 曲線 (フィー ドバック開)を交互に測定していく(1 枚測定するのに通常 数分から数十分かける)。高さの情報を画像化して表面形 状像が得られる(定電流モードと同じ)。同時に、各位置の 指定した電圧の dI/dV 値を画像化することで分光像が得 られる。例えば図 3(d) の dI/dV 曲線で平行な場合にピー クが現れた電圧での dI/dV 値を画像化すれば図 4 に示す ように、試料表面の磁石で探針の磁石と平行な場所は明る く、反平行な場所は暗くみえる。図4では直交する場合は 中間色で描いてある。このようにして STM スピンイメー ジングでは分光像中の明暗(スピンコントラスト)で、ス ピン偏極度ベクトルの大きさや方向を知ることができる。

図 5 にスピン偏極 STM 測定の実例を示す。強磁性 Fe(001) 基板の上に成長させた層間反強磁性 Mn(001) 薄 膜表面を使用した。測定は全て室温で行われた [24]。図 5(a) は測定系の断面モデルである。球は原子、矢印は磁石 の方向を示す。Mn(001) 膜は、一つの原子層内で強磁性結 合、各原子層間で反強磁性結合している。この測定には針 軸に対して垂直(=試料表面の面内)方向を向いた Fe/W 探針を使用する [67]。探針のスピン偏極度ベクトルが試料 表面・面直方向を向いている場合、トンネル電流中のスピ ン成分は $\vec{P}_s \ge \vec{P}_t$ の内積であるため cos $\theta = 0$ となり検出 できない。

この表面の表面形状像が図 5(b) である。寸法は 100nm×100nm (75×75 ピクセル)。明るい場所ほど高い。 数字は各場所の Mn 原子層の厚さを示す。8 原子層面から 12 原子層目まで確認できる。この各ピクセル位置でdI/dV曲線を測定する。図 5(c) に結果を示す。横軸が電圧、左 の縦軸が dI/dV、右の縦軸は規格化して距離依存性を除 去した (dI/dV)/T を示す。実線が dI/dV 曲線、点線が (dI/dV)/T 曲線、ダッシュ線が指数関数である。Mn 膜の 分光曲線の場合、規格化しなくては状態ピークを確認でき ない。点線の (dI/dV)/T 曲線に注目する。灰色の曲線は 偶数番目の原子層から得た。黒色の曲線は奇数番目の原子 層から得た。Mn 原子層は層間で反強磁性(=180 度) 結 合しているので、灰色の曲線は探針と試料のスピン偏極度 ベクトルが平行な場合、黒色の曲線は反平行な場合に測定 したものと分かる。

フェルミ準位(=0V)上、非占有準位+0.8V にピーク が確認できる。図3のモデルでは簡単のために探針のスピン偏極度を100%としたが、実際の実験で使用した Fe/W 探針のスピン偏極度は40%である。そのために反平行な 場合であっても完全にピークはなくならない。いずれにせ



FIG. 3: スピン偏極 STM の原理。(a,b) 磁性探針と磁性試料間 の電子スピンのトンネル遷移。 α はアップスピン、 β はダウン スピン、 E_F はフェルミ準位。探針がフェルミ準位でスピン偏極 度 100%の場合である。少数スピンバンドにアップスピンだけ がいる。探針と試料の磁気モーメントベクトルが (a) 平行な場 合と (b) 反平行な場合。試料の磁化が反転したために試料の少 数・多数スピンバンド図を反転させて描いている。電子のトン ネル遷移確率は平行な場合 $3 \times 3 + 0 \times 1 = 9$ 個、反平行な場合 $3 \times 1 + 0 \times 3 = 3$ 個。平行と反平行な場合で得られる (c)I(V)曲線と (d)dI/dV 曲線。

よ、この結果から +0.8V に少数スピンバンドがあること がわかる。またフェルミ準位下、占有準位 -0.5V にもピー クが確認できる。ここでは反平行のピークの方が大きい。 つまり、ここには多数スピンバンドがあることがわかる。 図 5(d) は +0.8V のピーク位置近傍の dI/dV 値を画像化 した像である。ピーク電圧位置で最も高い磁気コントラス トが得られる。図 5(b) と比較することで、偶数層が明る く、奇数層が暗く見えている。フェルミ準位上 +0.8V 近



FIG. 4: スピン偏極 STM による磁気イメージング。トンネル電流中のスピン遷移確率は、試料と探針のスピン偏極度ベクトルの内積に比例する: $dI_o/dV(1+|\vec{P}_s||\vec{P}_t|\cos\theta)$ 。各位置のdI/dV値を画像化することで磁気像となる。磁気像中のコントラストが \vec{P}_s と \vec{P}_t の内積に比例していると考える。



FIG. 5: スピン偏極 STM 分光による実例。Fe(001) ウィスカ単 結晶上に超高真空中・370K で成長させた bct-Mn(001) 超薄膜表 面の磁気イメージング。(a) 系の断面モデル。球は原子、矢印は スピン偏極度ベクトルを示す。(b)STM 表面形状像 (100 × 100 nm²)。(c)dI/dV 曲線と規格化 (dI/dV)/T 曲線。(d)dI/dV 像。 磁気コントラストが確認できる。探針のスピン偏極度ベクトルと 平行な場所が明るく、反平行な場所が暗くみえる。

傍では、偶数層のスピンは探針のスピンと平行、奇数層は 反平行であると一目でわかる。 様々な注意を払いながら磁性探針を用いて試料表面各ピ クセル位置で dI/dV 曲線を測定し、異なる場所で得られ た dI/dV 曲線間の dI/dV 値に差(=コントラスト)が観 察され、これが $\vec{P_s} \cdot \vec{P_t}$ に対応していれば試料のスピン情 報をとらえたことになる。しかし、この得られたコントラ ストが $\vec{P_s} \cdot \vec{P_t}$ であることを証明するのは難しい。なぜな ら、dI/dV にコントラストを生じる要因には以下の4つ があるからである;

- 1. 場所により異なる局所電子状態密度を持つ。
- 2. 場所により異なる仕事関数を持つ。
- 場所により各原子のスピン偏極度ベクトル (方向または大きさ) が異なる。
- 4. 場所により異種元素がある。

(1)(2)(4) による可能性が無い場合にのみコントラストが スピンによるものであると断定できる。さらに、得られた コントラストは試料・探針間距離(z)に依存し、時にはコ ントラストは反転する[24]。*dI/dV*を指数関数(T)で規格 化することによりこのz依存性は取り除けるのだが[24]、 *dI/dV*磁気像にはこの効果が含まれる。コントラストの 意味を理解するには十分な考察・解析が必要である。

試料表面に面直な針軸方向を z 軸とし、xy 軸は試料面 内にあるとすると、試料のスピン偏極度ベクトル \vec{P}_s は極 座標表示で

 $\vec{P_s} = (P_s \sin \theta_s \cos \phi_s, P_s \sin \theta_s \sin \phi_s, P_s \cos \theta_s)$

と記述できる。探針のスピン偏極度ベクトルも同様に、

 $\vec{P}_t = (P_t \sin \theta_t \cos \phi_t, P_t \sin \theta_t \sin \phi_t, P_t \cos \theta_t)$

と記述できる。それらを図 6 に示す。図 6(a) のように探 針のスピン偏極度ベクトルが任意の方向を向いている場合 $(\theta_t \neq 0 \ D_t)$ 、スピン偏極トンネル電流量は、

 $\vec{P_t} \cdot \vec{P_s} = |\vec{P_t}| |\vec{P_s}| (\sin \theta_s \cos \phi_s \sin \theta_t \cos \phi_t$ $+ \sin \theta_s \sin \phi_s \sin \theta_t \sin \phi_t + \cos \phi_s \cos \phi_t)$

に比例し、実験より得られたスピン偏極電流量から $\vec{P_s}$ を 得ることは非常に困難となる。なお、 θ はz軸からの角度、 ϕ はx軸からの角度である。

しかし、図 6(b) に示すように、仮に $\vec{P_t}$ が z 軸と平行 である場合、 $\theta_t = 0$, $\phi_t = 0$ となり z 成分しか残らな い: $\vec{P_t}$ =(0,0, P_t)。そのため $\vec{P_s} \cdot \vec{P_t} = |\vec{P_s}||\vec{P_t}|\cos\theta_s$ となり 試料の $\vec{P_s}$ の分布を容易に知ることができる。また、図 6(c) に示すように $\vec{P_t}$ が x 軸と平行であれば $\vec{P_t}$ =(P_t ,0,0)、 $\vec{P_t} \cdot \vec{P_s} = |\vec{P_s}||\vec{P_t}|\sin\theta_s\cos\phi_s$ となり試料の x 成分が検出 できる。

このように \vec{P}_s を探るためには、いかに探針の \vec{P}_t を制御 できるかが重要である。 \vec{P}_t を制御する方法として、外部よ り STM 全体へ z 軸または x 軸方向に磁場を印加し、強制 的に \vec{P}_t を制御させる方法が試みられてきている [10]。し かし、この方法では試料にも外部磁場がかかってしまい、 磁場なしでの試料のスピンを得ることはできない。それに 対して、探針の磁化を x 軸方向(試料面内方向)に高速 反転させ、その応答成分を検出する手法は漏れ磁場も小さ く有効といえる [13, 14]。 \vec{P}_t を真空中で直接測定する手法 は、ようやく 2009 年になって発表された [45]。スピン偏 極 STM では、スピン偏極成分は $\vec{P}_s \cdot \vec{P}_t$ に比例している以 上、 \vec{P}_t の制御なくして \vec{P}_s を正確にとらえる事はできない のである。



FIG. 6: 探針 ($\vec{P_t}$) と試料 ($\vec{P_s}$)のスピン偏極度ベクトルの関係。 $\vec{P_t}$ が任意の方向を向いている場合 (a)、 $\vec{P_t}$ が z 軸と平行な場合 (b)、 $\vec{P_t}$ が x 軸と平行な場合 (c)。黒矢印は、探針と試料のスピン偏極度ベクトルを示す。灰色矢印は、実際に磁性探針により検 出される試料のスピン偏極度ベクトル成分を示す。

E. スピン偏極度ベクトルと磁気モーメントベクトル

スピン偏極度ベクトルは、試料または探針の各エネル ギー位置の $\alpha \geq \beta$ の電子状態密度によって決まっている。 エネルギー位置が異なれば、スピン偏極度ベクトルの大き さ・方向(正負)は変わる。「スピン偏極度ベクトルが平行で ある」と言った場合の違いはここで生じる。磁気モーメント は、フェルミ準位までの $\alpha \geq \beta$ がはいる多数と少数スピンの 電子状態密度の積の差である: $\mu = \int_{-\infty}^{E_F} (\rho^{maj} - \rho^{min}) dV$ 。 一方、スピン偏極度ベクトルは各エネルギー位置($V = V_s$) での $\alpha \geq \beta$ の電子状態密度の差を和で割ったものである: $P(V_s) = (\rho^{maj}(V_s) - \rho^{min}(V_s))/(\rho^{maj}(V_s) + \rho^{min}(V_s))$ 。 試料と探針の磁気モーメントベクトルが平行であっても、 スピン偏極度ベクトルはエネルギー位置によって平行で あったり反平行であったりする。混同しないよう注意が必要である。

IV. 開発技術

このようにして、スピン偏極 STM 分光によるスピンイ メージングを用いるとナノ磁気材料のスピン偏極度ベク トル分布を原子スケールで確認することができる。また、 単一磁性原子などのナノ磁石測定では極低温が必要不可欠 である。原子レベルで平坦な基板を 10K 以下に冷却した 状態で原子を蒸着して作成する。単一分子は大きさによる が、よく利用される単一フタロシアニン分子程度の大きさ であれば室温で蒸着しても作成できる [28]。単一原子や単 一分子内の磁性イオンの量子スピン状態を測定するために は 1meV 以下のエネルギー分解能が必要となる。室温で は熱ゆらぎが約 26meV あるため検出できない。またスピ ン偏極 STM 測定の全ての作業は超高真空で行う必要があ る。また低温にするためにはクライオスタットなどの冷凍 機が必要である。機械振動・電流ノイズは最大限にカット しなくてはならない。磁場をかけるためには超電導コイル が必要となる。

A. 測定準備・手順

走査トンネル顕微鏡 (STM)は、数Åの隙間をはさんで 2つの電極があり、一方が探針、他方が試料である。探針 にピエゾ素子をとりつけ、ピエゾ素子にバイアスを印加す ることで探針を試料表面上で走査し表面凹凸像を観察でき る。ピエゾ素子の選択は様々であるが、一般的にxyピエ ゾ素子は±100-500nm、zピエゾ素子は±200-500nmの可 動範囲を有する物が広く用いられ市販されている(ピエゾ 素子分解能がz方向で1pm程度、xy方向で10pm以下で あれば問題ない)。xy軸は試料面内、z方向は試料面直方 向(針軸方向)とする。測定試料は通常この範囲以上に大 きいため、ピエゾ素子のみで試料表面全体への移動を行う ことは不可能である。xyz方向の粗動機構との併用が望ま しい。粗動機構としてはさまざまなものがあるが、最少可 動距離がピエゾ素子の最大走査範囲内であることが望まし い。市販のSTMはたいていそのように作製されている。

1. 超高真空装置·注意点

スピン偏極 STM 測定は超高真空環境で行われる。原子 までも観察できてしまう STM の高い分解能のために、試 料表面が10%以上不純物原子で覆われていてはスピン偏極 STM 測定はできない。低速電子線回折 (LEED:low energy electron diffraction) や Auger 分光で不純物が検出されな い場合でも、STM の原子像では不純物原子がまだ数%以 上ついていることがよくある。不純物が不規則に表面に吸 着している場合 LEED 等回折技術では検出できないので 注意が必要である。仮に表面の20%に不純物原子が吸着し ている場合を考えよう。たいてい不純物原子は、表面磁性 原子のハローサイトに吸着する。つまり1つの不純物原子 が数個の原子に影響をあたえ、その磁性金属の電子状態を 変えてしまう。20%の不純物原子であっても結果として、 表面すべてのスピンが影響を受けてしまいかねない。この ため、超高真空環境が必要なのである。一度、清浄な試料 表面が得られれば、超高真空チェンバ内にあるかぎり大き な汚れがつくことはない。

超高真空チェンバは、大気からの導入室、準備室、解析 室の3室あれば望ましい。各室は、超高真空用バルブによ り仕切られ、各室ごとに独立に排気ポンプがあることが望 ましい。また、到達真空度は、導入室は $10^{-7} \sim 10^{-6}$ Pa、 準備室は $10^{-8} \sim 10^{-7}$ Pa、解析室は $10^{-9} \sim 10^{-8}$ Pa が望 ましい。導入室にはターボ分子ポンプ、準備室にはターボ 分子ポンプ、イオンゲッターポンプ(Ar⁺ スパッタ時はバ ルブで隔離または停止)、チタンサブリメイションポンプ がほしい。ターボ分子ポンプの背圧用にロータリーポンプ やスクロールポンプ等がよく用いられる。(オイルフリー ポンプがあればその方がよい。)解析室は主にイオンゲッ ターポンプ、チタンサブリメイションポンプで排気をする。 ターボ分子ポンプがあればとりつけておき、解析室の真空 を破った際の排気用に使用する。無い場合は、準備室のポ ンプで排気すればよい。解析室にクライオスタットが付い ている低温 STM の場合、冷やすことで 4K シールド内の STM 周辺は 10⁻⁹Pa まで到達する。尚、STM 測定中、通 常ターボ分子ポンプは振動が大きいため停止する。ターボ 分子ポンプ停止に伴い、各室の真空が悪化することのない ようにバルブをとりつけるなど対策が必要である。

試料・探針の運搬は市販のトランスファーロッドを用い る。試料ホルダーや探針ホルダーを脱着できるようにトラ ンスファーロッド先端を試料ホルダーにあうように改造す る。超高真空チェンバ内の運搬用機器に関しては、様々な ものが市販されているので最適な作業ができるように工夫 するとよい。ウォブルスティックとトランスファーロッド を併用した運搬方法もよく用いられる。

新たな探針・試料を真空チェンバに導入する際は、導入 室のみを大気リークし、トランスファーロッドに探針・試 料ホルダーを取り付ける。通常、準備室、解析室は超高真 空のままである。導入室を閉じ粗排気の後、ターボ分子 ポンプで排気する。必要な場合はベークする。チェンバに ヒーターを巻きつけ耐熱シートで囲い、100-120度に加熱 しチェンバ内壁に吸着したガスを出し排気する。数時間か ら数十時間、ガスが出切るまで加熱する。10⁻³Pa以下で のベークが望ましい。ベーク後、導入室が10⁻⁶Pa以下で なったところで、導入室と準備室の間のバルブをあけ、準 備室に試料ホルダーを移動し、準備室内のマニピュレータ に取り付ける。マニピュレータ付きのトランスファーロッ ドを用いれば、準備室で処理した試料・探針をそのまま解 析室へ移動し、ウォブルスティック等で解析室内の STM 装置にセットすることもできる。

2. アプローチ・注意点

STM 測定において探針先端が最も重要である。特にス ピン偏極 STM では、探針先端のスピンの制御が鍵となる。 測定前の探針移動において、探針先端が試料に衝突し破 損することを防がなくてはならない。試料ホルダーの接 触不良や、試料または探針表面の汚染による導電不良が ある場合、探針を試料へ接近させた際にトンネル電流が 流れず探針は試料へ接触(衝突)する。また、トンネル条 件下で、不用意に装置に振動を加えるなどの外的要因でも 衝突は起こりうる。さらに、探針を測定したい試料表面に 正確に移動させなくてはならない。多くの市販の STM の 試料ホルダーに取り付け可能な試料の大きさは最大でも 15×15mm² 以下であるため、STM 用の試料の大きさはし ばしば 10mmx10mm 以下の場合もある。探針が試料真上 にきているかの判断は慎重にしなくてはならない。STM 回りのフランジに真空窓を取り付ける。拡大レンズを取り 付けた市販の CCD カメラを窓に取り付け、ディスプレイ 上に探針・試料近傍を拡大表示し観察する。

試料表面へ探針を接近させる手順をのべる。まず、粗動 機構を用いて探針をz方向に、試料がセットされる位置よ

り十分に離しておく (数 mm)。そうしてから試料を STM ヘセットする。粗動機構の xy を用いて探針を測定したい 試料領域へ移動させる。その後、探針を試料へ粗動機構を 用いて接近させる。STM では z ピエゾの測定可能領域は ±200-500nm であるため、これよりも表面凹凸の小さい試 料表面が必要である。そのため、大抵の試料表面(半導体、 金属等)は鏡面の事が多い。試料表面に反射した探針先端 を確認する。1 方向からの CCD カメラ観察では、奥行き はわかりにくいため、慎重に移動する。実際の探針先端と 試料に映った探針先端との中間が、探針先端が実際に接近 して STM 測定を行う領域である。CCD カメラの画像を見 ながら、慎重に粗動機構用いて探針を試料へ約1mm以下 まで近づけて行く。一般的な針の直径は0.1-0.5mm 程度で あるため、針の太さを参考にしながら、試料探針間距離を ディスプレイ上の CCD カメラ画像で見積もりながら、粗 動機構を用いて接近させる。CCD カメラ観察の際に、よ りはっきりと観察するために強い光を照射する。光を発す るものなら何でもかまわないが、最近は強い光を発する素 子が安価 (数百円) で購入できる。小型・静音で熱発生も なく、真空窓に大気側より貼り付けておくだけでよいので 便利である。

探針を試料表面へ1mm以下まで接近させた段階で、探 針が試料へ接近中に衝突することを避けるため、振動を生 ずるものはすべて停止するのが望ましい。 スピン偏極 STM は、通常、超高真空チェンバ内にある。排気用ポンプであ るターボ分子ポンプとその背圧用のロータリーポンプ等、 振動を生じるポンプはSTM 測定前に停止させる。STM 測 定中は、イオンポンプなど振動を生じないポンプで排気す る。その他、振動や音を生じるものがあれば全て停止また は装置から切り離す(真空ゲージ等)。通常、STM 装置に は除振機構がある。エアダンパー等で床からの振動を取り 除くものと、STM 装置内にあるダンパー(ばね吊下げ式、 O-ring ダンパー、エディーカレントダンピング等)の2段 構えで除振されていることが多い。スピン偏極 STM の場 合、探針・試料に磁性体を使用するため、エディーカレン トダンピング等の磁場を利用した除振を使用する場合は、 試料・探針位置での磁場がいくらであるか、あらかじめ確 認する必要がある。

次に、探針を自動制御モードで接近させる。探針より一 定電流が検出されたら接近を停止させるように z 方向の 粗動機構とフィードバック回路を組む。(市販 STM には 備わっている。)試料に 1-2V 程度の電圧をかける。半導 体のようにギャップをもつとわかっている試料の場合は、 ギャップ以上の電圧をかける。また、金属のような伝導性 試料であっても、清浄化が完全でない場合は、表面層に不 純物原子が吸着している場合がある。その際、電流が流れ にくくなる場合があるので、1-2V 程度の電圧印加が望ま しい。検出電流は 0.1-1nA 程度である。STM の検出電流 に含まれる電流ノイズレベルは、通常、50fA から数 pA で あるので、これを十分に上回る電流量であればよい。自動 制御モードで探針が試料へ接近していき、探針がトンネル 電流を検出したところで STM 測定に入る。

B. 装置構成

このように、スピン偏極STM を行うには様々な注意が 必要である。次に、この装置の具体的な開発手法のノウハ ウを述べる。キュリー温度は磁石の大きさが小さくなるに 従い急激に下がるため、ナノ材料の磁気特性を探るには極 低温で測定を行うのが通常である。単一原子など温度上昇 により容易に拡散するような測定対象では、極低温環境は 必要不可欠である。さらに、極低温とすることで熱ドリフ トの減衰およびエネルギー分解能の向上が実現する。単一 原子・分子内の量子スピン状態間のスピン励起を測定する 際、状態間のエネルギー差は数 meV 以下であるため室温 では熱ゆらぎ(約26meV)により測定できない。しかし、 液体ヘリウム温度(4.2K)まで冷却すれば約0.36meVまで 熱ゆらぎは減少し測定は可能となる。

現在 He3 やジュールトムソン効果を用いて 14mK で稼 働する STM が報告されているが [67]、装置は部屋数個分 を占めるほど巨大となる。本論文では、一般的なスピン偏 極 STM を行うのに必要と思われる液体窒素と液体へリウ ムを用いた、小型で安定な STM 装置開発に関して述べる。 STM 全体をクライオスタット下にセットし冷却できる仕 組みである。クライオスタットをジュールトムソンタイプ に交換することで 1K 以下での測定も可能である。また、 1K 以下の測定を行う際は、液体へリウムと金属の界面で カピッツア抵抗が生じるため熱が伝わらなくなるので注意 する。銀粒子を使用するなど工夫が必要となる。

STM は試料表面を原子スケールで観察できるため、1 個1個の酸素や炭素などの不純物原子も観測してしまう。 大気中では試料の表面は不純物で覆われているため、試料 表面の測定ができない。特に磁性体表面は貴金属と比べて 活性であるため不純物が化学吸着しやすい。結果として、 不純物原子との結合により局所的な表面磁性は大きく変わ る。特に1ナノメートルサイズの磁石では、1個の不純物 原子のナノ磁石全体への影響は大きい。そのためスピン偏 極 STM 測定および磁性探針や磁性試料の作成は全て超高 真空環境で行わなくてはならない。超高真空とするために 装置全体を100-150℃に加熱し、装置真空槽の壁に吸着し ている分子を脱離する必要がある。装置開発に使用した材 料全ては耐熱 200℃以上のものを使用するのが望ましい。

図 7 は装置の全体図である。STM 真空槽(図中(2)、 5×10⁻⁹ ~ 3×10⁻⁸ Pa)、準備真空槽(図中(3)、1-3×10⁻⁸ Pa)、針処理兼導入槽(図中(4,5)、5×10⁻⁸ ~ 2×10⁻⁷Pa) からなる。STM 真空槽の上部に超高真空クライオスタッ ト(図中(1))がつく。STM はこのクライオスタット下に セットする。装置全体を鋼フレームで支える。装置全体の 重心が、フレーム中心・低位置となるように設計した。ま た、超高真空をキープしたまま、試料や探針の移動を比較 的頻繁に行えなくては実験にならない。準備槽とSTM 槽 の試料・探針の輸送はゲートバルブをあけトランスファー ロッドとウォブルスティックを併用して行う。

準備槽には、スパッタイオンガン、低速電子線回折(兼 オージェ分光器)、電界衝撃型蒸着器、分子蒸着器、試料・ 探針加熱機構、パイロメーター温度計等を取り付ける。図 8(a)に一般的な準備槽内の配置を示す。焦点はチェンバー の中心にあり、試料や探針を中心位置に置いて処理を行う。

ナノ磁性体のスピン偏極ベクトルを検出するために磁性 探針を使用する。超高真空中でスパッタ及び 2000K に加 熱した W 探針先端に 1-10nm 磁性薄膜を蒸着し、漏れ磁 場が極力小さい磁性探針を作成する(室温で磁性探針とす る場合は 5nm 以上必要)。磁性探針は、真空を破ることな く極低温に冷やした STM 内にセットする。

原子レベルで平坦な導電性・金属表面を試料基板として



FIG. 7: 極低温スピン偏極 STM 装置。(1) クライオスタット冷 凍機, (2) 解析槽: STM チェンバー, (3) 準備槽, (4) トランス ファーロッド, (5) 導入室兼探針処理室

使用する(原子テラス幅は約50nm以上)。基板上の不純物原子量が1%以下となるまで清浄化する。試料基板の平 坦・清浄化処理は準備槽にて行う。基板温度が室温であっ ても作成可能な測定対象物は、磁性薄膜、金属ナノクラス ター、1nm 程度の分子(数十原子以上)である。

準備槽で作成した試料や探針は迅速に超高真空中内で STM へ取り付けなくてはならない。そのための機構を作 成した。図 8(b) に示す。トランスファーロッドに針運搬 ホルダーおよび試料ホルダーをセットし、準備槽と解析槽 の間の超高真空ゲートバルブをあけ、トランスファーロッ ドを用いて解析室へ移動する。解析室のウォブルスティッ クを用いてトランスファーロッドから取り出し、トランス ファーロッドを引っ込めてからウォブルスティックで STM 内の試料ステージに取り付ける。

図8(c)はSTM 槽内の断面である。冷却したSTM内の 試料表面に直接単一原子を吸着できるようにSTM内の試 料位置を向いたポートを取り付けた。ここに蒸着器を取り 付けた。STM回りの5Kシールド、78Kシールドのドア を短時間あけ数秒蒸着することで単一原子が試料基板上に 吸着する。また試料に探針を接近させる際、内部の様子を CCDカメラで拡大して観察するために、図8(c)のように 鏡を設置した。図8(c)中(1)の穴より準備槽で作成した試 料および探針をトランスファーロッドで移動し、ウォブル スティックでSTM内にセットする。なお、トランスファー ロッドは室温であるため、試料および探針は一度78Kシー ルドにとりつけたプレクーリングステージで冷却してから 4K-STMにセットする。



FIG. 8: (a) 準備槽内での試料・探針処理に必要なセットアップ。 (b) トランスファーロッドとウォブルスティックによる超高真空 内での準備槽から STM への探針・試料の移動機構。(c)STM 解 析槽内の断面図。

C. 針・試料ステージ&粗動機構

スピン偏極 STM 測定では、探針と試料の温度が均一で 安定な測定が強く求められる。市販の極低温 STM によっ ては探針と試料の温度が異なることがあるため、長時間・ 安定な測定が困難な場合がある(熱ドリフトが生じる)。そ こで試料・探針・ピエゾなど STM 心臓部はなるべく熱伝 導の高い銅で囲った。

図9に作成したSTMの探針およびピエゾスキャナチュー ブのポンチ絵と図面を示す。探針はMo製の針ホルダーに 接着剤で固定した。針ホルダーには溝が切ってありフォー クの付いた針取り出しホルダーを用いて針を取り出し準備 槽へ輸送できる。針ホルダーはバネで固定する。探針およ び針ホルダーはトンネル電流を検出する部分であるため周 りと絶縁する。絶縁体としてマコールを使用した。針ホル ダーが入る針ホルダー固定台はマコールを介してピエゾス キャナチューブに接着する。ピエゾスキャナチューブは超 高真空・室温から極低温で稼働するものを使用した。これ を銅筒(Auメッキ)内に入れ接着した。しかしこのまま では探針・針ホルダーとピエゾチューブの間に銅円板をいれ銅



FIG. 9: 探針およびピエゾチューブ作成図。(1) 探針, (2)Mo 針ホ ルダー, (3) 針ホルダー固定台 (板バネで針ホルダーを固定), (4) 絶縁マコールリング, (5) 冷却用 Cu リング, (6) 絶縁マコールリ ング, (7) ピエゾチューブ, (8) 絶縁マコール, (9) 銅筒。銅筒は六 角柱で、中に丸い穴を掘り探針・ピエゾチューブを接着した。

筒と金線でつないだ。接着剤として非伝導超高真空用導電性のもの (EPOTEK, H77) を使用した。

図9の探針部を試料表面へ衝突させることなくトンネル 電流を検出する距離(0.5-1.0nm)まで接近させる。これ を行うのが粗動機構である。粗動機構について説明する。 図9の銅筒は六角柱となっている。3回対称位置の側面に 研磨サファイア板(熱伝導が高い)を接着した。このサファ イア板の面を、図10に示すように3方向からアルミナ板 で板バネを利用して押さえつける。アルミナ板にはピエゾ 板がついている。このピエゾ板にノコギリ波電圧をかける ことで、アルミナ板がサファイア板表面を瞬間的に滑り、 その後ゆっくり電圧が戻る際は摩擦によりサファイア板が アルミナ板と共に動く。この slip-stick motion により探針 を nm の精度で約10mm 可動できる。この動作を z 粗動 (z coarse motion)と呼ぶ。粗動機構の利点は探針を試料 へ接近させる過程で、外部からの熱流入や外部振動が遮蔽 できる点である。

z粗動を用いて探針を試料へ接近させ、トンネル電流を 検出すればピエゾスキャナーを用いて試料表面を観察でき るのだが、観察できる最大領域はピエゾチューブの振り幅 で決まる。PCからの最大±10Vの信号を電圧アンプで増 幅 (x1,x4,x7,x14) し最大 ±140V を x-y ピエゾスキャナー に印加する。これにより最大±8000nmの領域を観察でき る。ある程度広い領域から測定したい対象を見つけ、拡大 して電子スピン分光測定を行う。しかし、その観察可能範 囲に適した対象が無い場合や、探針が試料表面に触れ表面 が荒れてしまう事がある。この場合、数 µm から mm レベ ルで測定領域を移動したい。そこで図10上部に示すよう なx粗動機構を試料ホルダー周りに作成した。試料はMo 板の試料ホルダーに固定されている。この準備槽から輸送 されてきた試料ホルダーは試料ステージにセットされる。 試料ステージの上下各3か所にピエゾ板を接着し、銅電極 を介してルビー玉を接着した。この試料ステージを上下か らサファイア板で板バネを介して押さえつける。ピエゾ板 にノコギリ波電圧をかけることでサファイア面とピエゾ板



FIG. 10: (a) x と z 粗動機構 (coarse motion)。(b) 粗動を実現 しているピエゾ板の仕組み。電圧印加により変形する。(c) 粗動 時に板ピエゾに印加するノコギリ波。電圧が瞬間的に変化する際 にピエゾ板につけたアルミナ板とサファイア板が滑り、ゆっくり 電圧が変化する際は摩擦が働く試料ステージおよび探針・ピエゾ チューブを移動できる (slip-stick motion)。

に付けたルビー玉が slip-stick motion をおこし試料ステー ジは横方向に動く (x 粗動 (x coarse motion))。これにより 探針を nm の精度で ±2.5mm 試料表面の任意の場所に移 動できる。

図11(a)に試料ステージを示す。ピエゾ板には最大400V の電圧がかかるため絶縁には注意が必要である。銅製試料 ホルダーを0.25mm 掘り下げる。マコール板を非伝導接着 剤で接着する(図中(5))。その上に銅板電極(GND、図中 (4))、ピエゾ素子(図中(3))、上部銅電極(高圧印可、図 中(2))、ルビー玉(図中(1))を順に接着する。ピエゾに 上下方向から電界がかかり横方向にピエゾの上下の面がず れる。

図11(b)は100V(3kHz)のノコギリ波を約30秒間印加した際、実際に試料ホルダーがどう動いたかを示す。電圧印加前後で試料ホルダーが右方向に2mm移動した。図11(c)は、1電圧パルスあたりの変化量を示す。40Vがthreshold電圧であり電圧の増加とともに1パルス当たりの移動距離は増す。40Vの1電圧パルスで約3nm試料ホルダーは動いた。左・右方向とも同様に変化した。

次に、z 粗動機構の詳細を示す。図 12(a) は STM 装置部 分の断面図である。図 10 で示したように、六角柱銅筒側 面のサファイア板とアルミナ板が接する。x 粗動に対しz 粗動は重力の影響を強く受ける。下方向には僅かなピエゾ への電圧印加ですむが、上方向へ動かすにはより強い電圧 印加が必要となる。そこでz粗動には1箇所につきピエゾ 板2枚を使用する。1枚のサファイア板を図12(a) に示す ように上下二か所で押しているため、計12枚のピエゾ板 を使用する。1 枚目のピエゾ板 (図中(3)) を本体の金メッ キ銅に直接接着する。2枚目のピエゾ板 (図中(2)) との間 に銅電極板 (t0.1、図中(4)) を加え、ここに電圧を印加す ることで、1箇所の電極への電圧印加で二つのピエゾ板に 同時に電界がかかるようにした。ピエゾ板は図12(a)の矢 印が示す方向に歪む。30V~40Vの電圧を数秒かけるだけ で、容易に針ホルダーは下がった。逆に、上方向への移動 は、重力の影響で非常にゆっくり上昇した。100V(3kHz) の電圧/コギリ波を約30秒印加した場合、図12(b)に示



FIG. 11: (a) 試料ステージ。(1) ルビー玉,(2)Cu 電極板,(3) 板ピ エゾ,(4)Cu 電極板,(5) 絶縁マコール板。各部品を超真空用伝導 および非伝導エポキシで硬化接着。(b)x 粗動テスト。100V(3kHz) を 30 秒間、図 (a) 中の 6 個の板ピエゾに印加した結果 2mm 右 方向へ試料ステージは移動した。(c) 板ピエゾへのノコギリ電圧 波による x 粗動移動距離 [nm/pulse] (300 K)。"+X"と"-X"は 左と右方向そ示す。



FIG. 12: (a)z 粗動機構。(1) アルミナ板, (2,3) 板ピエゾ, (4)Cu 電極板。(b)z 粗動テスト。100V(3kHz) を 30 秒間、図 (a) 中の 6x2=12 個の板ピエゾに印加した結果 1mm 上方向へ探針・ピエ ゾチューブは移動した。

D. 針交換機構および加熱・スパッタ・蒸着

磁性探針の作成は、スピン偏極 STM において試料のス ピンを検出できるかどうかの最も重要な鍵である。MFM などの磁性探針では、漏れ磁場を検出するため大気にさら して表面が酸化されてもあまり大きな影響はない。しかし スピン偏極 STM では、探針表面のスピン偏極度が決め手 となる。表面が酸素等の不純物で覆われるとスピン偏極度 はクエンチしてしまい、磁性探針として機能しなくなる。

そのため STM 磁性探針の処理は全て超高真空で行う必要がある。我々は図 14(a) 上部に示すような機構を取り付けた。準備槽でも導入槽でも構わない。大気より導入した 探針はベークにより超高真空とする。

図 14(b,c) に示すように、W 針は針ホルダーの接着され、さらに針ホルダーの「くびれ」を利用して針運搬ホル ダーに取り付けられている。針運搬ホルダーから、針ホル ダーを脱着できるように線バネをつけている (金属線をス ポット溶接)。線バネの強度は弱く軽く抑える程度である。 針ホルダーが針運搬ホルダーから転げ落ちない程度で十分 である。線バネを強くすると、真空中では摩擦も増えるた め、針ホルダーの脱着が至難を極め、場合によってはピエ ゾ等に負荷がかかり壊れるリスクがある。バネの調整は、

すように 1mm 上昇した。図 13(a) は一電圧パルスあたり の z 粗動変化量 (300K) を示す。下方向には 40V 以下で動 くが、上方向には 40V 以上が必要であった。

図10から図12に示すピエゾ素子を用いた粗動機構を用 いることで外部からの熱流入や振動は遮断できる。しかし ピエゾ素子の動作能力は低温では減衰するため、より高圧 が必要となる。図13(b,c)に低温での粗動の1電圧パルス あたりの移動距離をしめす。しきい値電圧は、77.5Kでは 下方向60V、上方向120V、4.3Kでは下方向70V、上方向 は180Vであった。粗動の動きはサファイア板とアルミナ 板、サファイア板とルビー玉の接触圧力できまる。強く押 し付ければ摩擦が大きくなり粗動は動かない。また圧が弱 すぎても緩んでしまい動かず、z粗動に至っては重力によ り落下する。板バネの調整が最も重要である。室温で調整 の際は試料や針ステージをピンセットで静かに押した際に スムーズに滑って動く程度からややきつめに圧をかける。 室温にて 30-50V で粗動が動けば極低温でも 200-300V の 電圧印加で動くことが多い。



FIG. 13: 板ピエゾへのノコギリ電圧波による z 粗動移動距離 [nm/pulse] (300 K)。(a)300K, (b)77.5K, (c)4.3K。

日々の実験をスムーズに行う上で極めて重要なポイントで ある。図 14(c) のように、針運搬ホルダーには、試料ホル ダーと同様に「首」と「頭」が取り付けてある。ここをウォ ブルスティックでひっかけ (または掴んで) 持ち運ぶ。

針運搬ホルダーの探針を、イオンスパッタガンにより不 純物膜を除去する。さらに図 14(d) に示すようにフィラメ ント (W \u00fb0 0.15mm)を探針先端の 1-2mm 上に移動し電流 を流す。フィラメントからの輻射熱に加え、探針に正電圧 を印加することでフィラメントからの熱電子を探針先端に 衝突させ瞬間的 (数秒から数分、真空度が悪化しすぎない 程度)に探針先端部を 2000K まで加熱する。これにより W 探針先端の不純物除去と単結晶化が実現する。この W 針先端上に超高真空中で磁性膜を数 nm 厚さ分だけ吸着



FIG. 14: 上図:導入室に取り付けた探針のスパッタ・加熱・蒸 着器 (磁性膜)。下図:上からの W フィラメントによる探針加熱 の様子。

する。

針運搬ホルダーをトランスファーロッドに取り付け、これ を超高真空を破ることなくSTM解析槽まで運ぶ(図8(b))。 ウォブルスティックを用いてこのホルダーを、図11の試 料ステージに入れる。この状態が図15(a)である。針ホル ダーを図10に示すようにピエゾチューブ上の針ホルダー 固定台にセットしなくてはならない。そこで図15(b)に示 すようにz粗動機構を用いてピエゾチューブを上に移動す る。図9のピエゾチューブ上の針固定ホルダーには穴があ



FIG. 15: x と z 粗動機構を用いた探針取り出し・取り付け。

いており、針ホルダーの一部が挿入できる。しっかし挿入 したことを CCD カメラ等で確認する。確認後、x 粗動機 構を用いて試料ステージを横方向に移動する。図 14(c) に 示すように、探針ホルダーのくびれが探針運搬ホルダーに より線ばねで抑えらているが、x 方向に動かすことで線ば ねからくびれが外れる。外れた所で図 15(d) のようにピエ ゾチューブを下におろす。図 15(a)-(d) の行程により、作 成した磁性探針を超高真空を破ることなく STM に取り付 けられる。後述するが、低温に冷やした STM にセットす る場合は、作成した磁性探針を 78K シールド上のプレクー リングステージに 10 分ほど取り付け冷やしてから STM 内に取り付ける。このようにして、超高真空を破らずに探 針作成と STM 測定を行うことがスピン偏極 STM では肝 心である。

E. 除振機構

STM を用いて電子スピン分光測定を行う際、トンネル 電流のフィードバック回路を切り探針・試料間距離を固定 する。ここで固定といっているが実際には外部からの機械 振動により探針・試料間距離は変化し、結果としてキャパ シタンス ($C = \epsilon S/d, \epsilon$:誘電率、S:面積、d:距離)の変化に より電流ノイズ (I = V * dC/dt)が生じる。このため、外 部振動は極限まで減衰しなくてはならない。

通常 STM 装置全体は空気ばね等のダンパーにのせる。 STM の設置環境により外部からの振動の大きさは異なる が、建物の低層階ほどよいとされ地下が最も振動が少な い。外部振動の大きい場合はより振動を低減する高性能な アクティブダンパーが必要となる。 我々の場合、建物一階の独立区画に装置を設置したため 外部振動は微小であった。しかし念のため以下のような除 振機構を設置した。建物の床の上にゲルシート(10cm角 & 15Hz以上の振動を減衰)9枚を等間隔で並べ、その上 に木板を置いた。木板の上にエアダンパー4つ(数Hz以 上の振動を減衰)を設置し図7に示すSUSフレームを設 置し、各真空槽、ポンプ、クライオスタットを順に接続し た。STMはクライオスタットの液体へリウムタンク下に取 り付ける。液体へリウムタンクの長さは500mm(4 Little) あり、さらに熱交換器を通してSTMの約1000mm上の1 箇所で溶接されている。つまり、液体へリウムタンク自体 が除振の役割を果たしSTMへの振動を減衰してくれる。

これに加えて図 16 に示すように、液体ヘリウムタンク 下の熱浴部分から自作した CuBe バネ 3 本で STM を吊 るす。バネの共鳴周波数が1Hz 程度となるように設計・ 作成した。バネの伸びる長さは、本 STM のドッキング システムの設計上mm オーダーで制御しなくてはならな い。そこでベリリウム銅バネを自作した。 $mg = 3k\Delta X$, $k = Gd^4/8D^3N, \ \Delta X = X_{MAX} - X_o = X_{MAX} - Nd,$ 共鳴周波数 $f = (1/2\pi)\sqrt{k/m} = (1/2\pi)\sqrt{g/3\Delta X}$ (m: STM 質量 250g, バネ 3 本, d: 線直径, D: バネ直径, N: 巻数, ΔX : 伸び長、 X_{MAX} : バネ最大長、 X_o : 自然長, $G = E/2(1+\alpha), E: ヤング率, \alpha: ポアソン比)$ 。ベリリウム 銅のヤング率は約130 GPa、ポアソン比: 0.3、D=4 mm、 d=0.31 mm、N=80 巻とすることで、バネ定数 k=13.53 N/m, ΔX =60.4 mm, dN=24.8 mm, f=1.17 Hz となるバ ネを設計・作成した。バネ自体の共振を防ぐためにバネの 中にはテフロンテープをつめる。さらにエディカレントダ ンピングが有効である。STM 本体は銅製であるため磁場 印加によりエディカレントが発生し除振の役割を果たす。

バネは以下のように作成した。CuBe線(直径0.31mm) の一端におもりをつけ、張力を持たせた状態で直径3.4mm のロッドに線を隙間ないように巻きつけていく。設計のバ ネ長になったところで太い銅線などでCuBe線を緩まない ようにしっかり固定する。これを炉(アルゴン雰囲気が望 ましい)に入れ350℃で60分加熱(硬化)しバネとする。 これらの除振機構によりSTM測定中、人声や装置に触 れても振動は除振されSTM測定への影響は電流ノイズ以 下まで減衰できた。この装置により得られたfcc-Ag(001) 表面の原子像を図16中に示す。

F. 電流ノイズ

ナノ磁性体の磁気構造を探るためには、磁性探針からの スピン偏極電流を使用する。しかしトンネル電流中に含ま れるスピン成分は微小である。トンネル電流中に含まれる 電流ノイズは通常数〜数十 pA であるが、1pA 以下とする ことが特にスピン検出では望ましい。

トンネル電流は、探針から液体ヘリウムタンク下の配 線冷却部を経由してタンク内を貫く穴を通過し、クライ オスタット上部の BNC 端子を通して真空槽から大気に出 る。BNC 端子に電流増幅アンプを取り付け STM コント ローラへ信号入力する。つまり探針から増幅アンプに至る まで約 1m ある。これがアンテナとなりノイズを拾う。配 線によるノイズ発生を抑えるためキャパシタンスの低い超 高真空対応(耐熱 200 度)のシールド付鋼線(50pF/m、 ϕ 0.125mm、Cooner Wires 社製)を使用する。試料バイア





FIG. 16: 液体ヘリウムタンク底部の除振機構。STM が CuBe バネ3本で吊り下げられている。

ス用配線も同じ線を使用。これにより、配線が生ずるノイ ズを極力小さくする。

真空槽、コントローラ・電源類、同軸ケーブル等は接地 する必要がある。しかし、基準となるグラウンド (GND) と、各 GND を接続する太い銅線にも僅かな抵抗があるた め、GND 間に電位差が生じる。STM 測定機構の GND は 基準 GND と直接接続し、各系の GND とは接続しない。2 つ以上の GND 間を接続すると GND ループができ、これ が電流ノイズ源となる。また、STM 配線近くに AC100V の配線を近づけないよう注意する。

探針からの電流を増幅するアンプ、STM コントロー ラ、ピエゾスキャナチューブへの電圧電源もノイズ源と なる。そこで電流ノイズが理想限界に近い 4.3fA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ の電流増幅アンプ (FEMTO 社)を使用した。なお、 Gain:X=1V/nA → R=10⁹Ω とすれば、電圧および電流 ノイズは以下のように記述できる: $V_{noise} = \sqrt{4k_BTRdf}$, $I_{noise} = V_{noise}/R = \sqrt{4k_BTdf/R_o}$ のまり、Gain が 高いほど電流ノイズは減る。アンプは 300K であるた め、 $I_{noise} = 4 \times 10^{-15} \text{A}\sqrt{df} = 4\text{fA}\sqrt{df}$ となる。1 点 の測定に 10 ミリ秒要するなら、df = 1/10ms = 100Hz。 10^9Gain では $4\text{fA}\sqrt{100} = 40\text{fA}$ となる。Peak-to-peak noise は $\sqrt{2} \times 40\text{fA} \approx 56\text{fA}$ となる。また、最近は 20bit 以上のデ ジタル制御コントローラが市販されている。16bit コント

FIG. 17: 探針が試料から離れている非トンネル状態での、電流 ノイズの周波数依存性。(a) 図 16 のダンパーが OFF 状態の時。 ヘリウムタンク下にドッキングしている。(b) 試料ステージ横の 熱センサーを ON した。(c) 準備槽のターボ分子ポンプをあえて 起動した。

ローラの bit ノイズは $20V/2^{16}$ =約 0.305mV あるが、20bit での bit ノイズは約 19μ V となる。また、ピエゾスキャナー への電圧増幅にはリップル電圧約 80μ V のアンプも市販さ れているので使用した方がよい。図 17 は、図 16 のよう にバネに吊り下げずヘリウムタンク下の熱浴に固定した状 態で測定した電流ノイズの周波数依存性である(つまりあ えて悪環境下での実験)。ベースノイズは約 5fA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ で ある。図 17(a) は探針が検出するノイズである。50Hz で 70fA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ のノイズが確認できる。GND ループによると 考えられる。

試料横に取り付けた温度計(Si ダイオードまたはセル ノックス)を起動すると図 17(b)のように 100Hz 周期の ノイズ (50-150fA/ $\sqrt{\text{Hz}}$)が確認できる。温度計配線とト ンネル電流配線とが内部で干渉している。さらに、ター ボ分子ポンプを起動すると図 17(c)のように、振動によ る電流ノイズの増幅が確認できる(最大で約 500Hz に約 400fA/ $\sqrt{\text{Hz}}$)。通常、スピン偏極 STM 測定を行う際は、 積算電流ノイズ量が ≤ 1 pA 程度であればよい。 極低温 STM と呼ばれているものは多々あるが、STM 全体を均一に冷却できなければ安定な電子スピン分光測定を行うことは難しい。特に、スピン偏極 STM では全ての作業を超高真空下で行わねばならない。準備槽で磁性探針・磁性試料を作成した後、数分~数十分で急速冷凍し、その後 STM 内にセットする。作業を迅速・シンプルに行う機構が必要であり、かつ低温を安定に保てなくてはならない。

図 18 に低温機構を示す。超高真空クライオスタット (CryoVac 社、ICF フランジ)を使用した。クライオスタッ トは大気から見て、200K シールド、液体窒素タンク(15 リットル)、20K シールド、液体ヘリウムタンク(4 リット ル)からなる。クライオスタットには様々な種類がある。 8 リットルや 10 リットルのものも使用しているが、ここ では4 リットルの場合を示す。各部は超高真空により隔離 されている。液体窒素の沸騰による振動を抑えるため液体 窒素タンク内には銅ウールをいれてある。STM や配線の 無い状態で4 リットルで 100 時間 4.5K を保持できること を確認にしている。

図 19 に示すように配線はクライオスタット上部の電流 導入端子 (300K) につながる。300K の配線は熱交換器周辺 でまず冷やされ、さらに液体ヘリウムタンク内の穴を通っ てヘリウムタンク下にくる。液体ヘリウムタンクの下に銅 製(金メッキ)の配線冷却部がある。ここで全ての配線を 確実に極低温に冷やす。

トンネル電流と試料バイアス用配線として低静電容量の シールド付鋼線を使用する。そのほかの配線はポリイミド 被覆マンガニン線(ϕ 0.14mm)を使用する。鋼線・マンガ ニン線の熱伝導は銅線の約1000倍悪い。配線冷却部は図 19右図のように作成した。金メッキ銅に穴(ϕ 0.6mm)を あけアルミナチューブを接着する。その中に銀メッキ鋼線 を入れ接着する。これに上から来た配線の先端に接着した 金メッキピンを挿入する。下側からも金メッキピンを差し 込みSTM内部へつながる。超高真空にするためカプトン など耐熱性の高い被覆線がよい。配線の油脂は除去する。

STM は二重の銅 (金メッキ) またはアルミ製シールドで 300K からの熱輻射をカットしている。図 18 に示すように 液体ヘリウムタンク下に接触している 5K シールドと、液 体窒素タンク下からの 78K シールドである。シールド間 は超高真空層で隔離されている。

準備槽にて作成した磁性探針や磁性試料を素早くSTM 内に導入するため、5Kシールドと78Kシールドにそれぞ れ図20に示すようにドアを取り付ける。テフロン製ビス の上をアルミ製ドアが動く。外部よりウォブルスティック を用いてドアの開閉をスムーズに行える。冷却した際テフ ロンはアルミに比べて縮むので、この点を考慮して設計す る。ドアとシールド間は1mm 程度が望ましい。1mm以下 では熱収縮に伴いシールドとドアが歪み、室温ではドアが スムーズに開閉できても(ドアの開閉はウォブルスティッ クで行う)、冷却すると歪みやそれに伴う摩擦により全く 動かなくなってしまう。我々も開発当初何度か失敗を繰り 返した。

また、準備槽で作成した探針や試料は 300K 以上ある。 これを極低温に冷やした STM 内に導入することは無駄に 冷却材を消耗することになる。78K シールドに試料・探針 ホルダーを設置できる場所を設け(プレクーリングステー ジ)300K から 78K 程度まで冷やしたのちに STM 内へ探



FIG. 18: 冷却機構。

針・試料を導入する。

STM 測定中は外部からの振動を遮蔽し、安定な測定を 実施するために図 16 のように CuBe バネで STM 本体を つりさげる。しかし、試料・探針の出し入れや STM 全体 を急速冷凍したい場合は、STM を液体ヘリウムタンク下 の熱浴にしっかり密着固定する必要がある。そのためには STM を下方向より上に向かって押し上げ液体ヘリウムタ ンク下の熱浴とドッキングできる機構が必要である。その 際、ドッキング機構も5K シールド内にあり熱的に独立で なければならない。そこで図 21 に示すドッキング機構を 5K シールドに取り付けた。図 21 の左図は外観図、右図は 内部図である。

図 21(a) では、STM 本体は上側の熱浴と離れ CuBe バネに吊り下がっている状態である。STM 下側にはSTM を押し上げるためのロッドが確認できる。ロッドは5K シールドから伸びる3本の足で支えられている。この足は5K シールドのドアの下に取り付けられた円筒につながって



FIG. 19: 配線冷却機構。



FIG. 20: 冷却シールドに取り付けたドア。

いる。この円筒には図 21(a) 左が示すように右上がりの溝 がある。円筒をウォブルスティックで図 21 のドアと同じ 要領で回すと円筒は回転する。5K シールドに縦方向に溝 を切っておくことで、円筒を回転すると足は溝に沿って動 き、結果としてロッドが上下に動く。このドッキング機構 を行うためには正確に CuBe バネを作成する必要がある。 図 21(a) のドッキング OFF 状態でバネが伸びすぎては下 のロッドにあたり振動が入る。図 21(b) は円筒を回転させ 足が斜めに切った溝の中心付近にあがってきた時点での図 面である。ロッドが上がり STM 下に触れている。さらに 円筒を回転させると足が溝に沿ってあがる。図 21(c) では 足は上がりきり、ロッドはしっかりと STM を持ち上げ熱 浴にドッキングする。この機構により、5K シールドは熱 的に閉じた状態でダンパー ON・OFF が可能となる。

ロッド先端のSTM 底部と接する部分は熱伝導の悪いものがよい。ロッドはヘリウムタンク底部と比べ温度が高い

ためSTM へ余計な熱が流入してしまう。SUS や絶縁物がよい。

上記のようにして STM を冷却するが、これだけでは熱 的に浮いている箇所がある。例えば、シールドのドアや ドッキングシステムの押し上げ部である。これらが新たな 熱源となる。図 22 に示すように計 6 か所で Cu 線または Au 線を用いて熱冷却用の配線を追加した。但し、配線に は注意が必要である。太い線を用いると CuBe 線で吊り下 げる意味がなくなる。

これらの冷却機構を用いて、図18の液体窒素タンク(15 リットル)と液体ヘリウムタンク(4リットル)に冷却材 を注入しSTM全体がどのように時間とともに冷却するか 確認した。温度計はSTM内試料横と配線冷却部の二箇所 に取り付け、温度を確認した。

まず双方のタンクに液体窒素を注入する。図 21(c) の ドッキング状態で冷却した。図 23(a) に結果を示す。注入 後約 30 分で 300K から 100K へ冷却し、50 分で 80K、そ の後100分で78Kに達した。その後、補充することなく 約 77.5K で 70 時間以上温度は安定であった。次に、液体 ヘリウムタンクから窒素ガスを注入し残った液体窒素を だし、ダイアフラムポンプにて排気後 2-3 回ヘリウムガス パージを行い、液体ヘリウムを注入した。温度の経時変化 を図 23(b) に示す。注入開始後、15分で10K以下に下がっ た。その後徐々に温度は下がり STM 温度は約1.5 時間後 に4.3Kに達した。その後、約30時間温度を保持した。約 30 時間おきにヘリウムを 4 リットル注入することで STM を 4.3K に保持できる(配線冷却部は 4.7K)。ヘリウム消 費速度は約0.10-0.15 リットル/時間である。最長で0.05 リットル/時間を記録したが、ヘリウム消費量は、僅かな 熱リークや STM 測定条件に大きく依存する。通常使用に おいては1-2日に一度液体ヘリウムを補充するのが無難で ある。

図24は、極低温測定のデモンストレーションである。冷却したSTM室にセットしたFe(001)単結晶上に、図8(c)の構成でシールドのドアをあけ(温度は10-15Kへ上昇する)、0.005MLだけ鉄を蒸着した。図24(a)は表面形状像を示す。黒点は酸素原子1個を示す。Fe(001)は貴金属に比べ活性なため酸化しやすい。白い輝点が吸着した鉄の単一原子である。図24(b)に、Fe(001)と鉄単一原子で測定した*dI/dV*曲線を示す。

磁性試料の測定において温度依存は重要なファクターの 1つである。そのため極低温 STM の試料近くにヒーター を設置しておけば、4K から数十 K 以上に温度を変化でき る。我々は、1000 Ω の薄膜抵抗(鉛フリー、超高真空用、 セラミックス製)を使用した。加熱用抵抗までの配線イン ピーダンスは 50 Ω あるため、それよりも大きな抵抗を使 用する。これに真空外より電流を流し熱を発生させ STM を加熱できる。

H. 超電導コイル開発

スピン偏極 STM 測定において、磁場を印加し、単一原 子・分子、ナノ磁石、磁性薄膜のスピン偏極度ベクトルの 磁場依存性(磁気異方性)、量子スピン干渉効果、量子ス ピン状態のゼーマン分裂過程などが研究されてきている。 既に示したように、スピン偏極 STM は全て超高真空で行 わなくてはならない。そのため外磁場をかけるコイルは



FIG. 21: STM 急速冷凍用ドッキング機構。



FIG. 22: 冷却のための追加 Cu 線。

STM チェンバーの外側に設置するか、超高真空の STM 周 りにセットするしかない。STM チェンバーの外に設置す る場合、市販の超電導コイルを STM チェンバーに合うよ うに配置するだけである。本論文では、あえて超高真空中 で STM のすぐ横に、自作した超電導コイルを設置し、自 作による高磁場印加型の極低温 STM の開発ノウハウを記 述する。

STM 装置周り、5K シールド内のスペースに図 25(a) に 示すように内径 50mm 外径 90mm のサイズで超電導コイ ルをセットする。超高真空下で使用するため、揮発性の高 い半田やワニスは使用できない。そこでアルマイト処理を 施したアルミ製ボビンにカプトン被覆 NbTi 線 (SuperCon 社, 54S43 型, ϕ 0.229 mm, T_c ~10 K, r_c ~10 mm) を、図 25(b) に示すように手動巻き線機を用いて 166 巻/層 x98 層=16268 回巻き付け作成した (当初計画、170 巻/層 x96 層=16320 巻)。コイルに電流を流し磁場を印加中に線が動 けばクエンチする。そこで一層毎に超高真空用非伝導エポ キシ (EPOTEK,H77) で硬化した。

この超電導コイルを図 25(a) のように STM の周囲に固 定する。図 25(b) で作成したコイルは1層毎に接着剤を塗 布しているが、超高真空中で電流を流した際、僅かな線 のブレで超電導が不安定となりクエンチする。これを防 ぐため、図 25(c) に示すように超電導コイルの外側に蓋を し、さらに蓋にあけた穴よりコイルと蓋の間隙に接着剤 を注射器にて注入し硬化した(超高真空用非伝導エポキシ EPOTEK-H77 使用)。ヘリウムタンク下に切ってあるネ ジ穴を利用して 2本のロッドで支える。コイルのボビン 内径 50mm 内に STM は入る。STM 測定する際は、3本 の CuBe バネに STM は吊るされ(25mm 下へさがり)、図 25(a) が示すようにコイル内へ入る。計算シミュレーショ ン(フリーソフト femm 使用)より今回作成したコイルが つくる磁場を計算した。図 25(d) にシミュレーション結果



FIG. 23: 冷却中の温度の時間変化。(a) 液体窒素、(b) 液体ヘリウムを使用した場合。

を示す。STM 試料付近 ±10mm では磁場は均一となる。 20A 電流を流した際の試料位置の磁場は約 4T (試料表面 垂直方向)となる。

この超電導コイルへ大気側より、安全に安定に電流を流 すために図 26 のような配線を組む。図 26 の超高真空クラ イオスタットの上部 ICF34 フランジに電流導入端子を取 り付ける。市販の整流ダイオード (1000V 以上,10A 以上) 複数個を用いて図 26 に示すような回路をコイルと並列に 取り付ける。理想では超電導 NbTi コイルの近くに設置し たいが、超高真空中でありベーク処理にて 150 ℃近くまで 加熱するため整流ダイオードは大気側に取り付けた。クエ



FIG. 24: Fe(001) に吸着した鉄単一原子。(a)STM 表面形状像 と (b)Fe(001) 表面と単一原子上で測定した dI/dV 曲線。

ンチ時に電流が励磁電源にダメージを与えるのを防ぐ。

励磁電源からの電流は電流導入端子を通して超高真空 中に入る。電流導入端子の真空側に銅ジョイント取り付 け銅線を固定する。銅線はクライオスタットのチェンバー 外壁 (300K) と 200K シールド筒の僅か数 mm の間を通し て液体窒素タンク下まで引っ張ってくる。銅線は当然導電 性のためカプトンテープ (耐熱 220 °C)を丁寧に巻きつけ チェンバーやシールドとの絶縁をとる。液体窒素タンク下 にて図 26 に示すように銅線を高温超電導線に接続する。 高温超電導線は、SuperPower 社, BSCCO, 2G HTS wire, SCS4050 型を使用した: $T_c \sim 90$ K, 臨界曲率半径 $r_c \sim 11$ mm, 幅 4mm, 厚さ 0.1mm。接続するため図 27(a) のよう な接続機構を取り付けた。我々が使用した高温超電導線の 曲率半径は 11mm であったため、半径 20mm のかまぼこ 型のガイドを作成し、これに高温超伝導線を沿わせ銅線と 固定した。接続部は、アルマイト処理したアルミブロック、 および絶縁で熱伝導が高いサファイア板を利用した。

高温超電導線を用いて NbTi 超電導コイルまで配線し た。液体窒素タンク底 (78K) から液体窒素タンク (78K) と 20K シールドの間を通して高温超電導線を液体へリウ ムタンク上にだし、熱浴板の部分に図 27(b) のような直径 40mm のかまぼこ型のガイドを再びとりつけ、これに沿わ せて高温超電導線を 180 度曲げた。高温超電導線を液体へ リウムタンクを貫く配線用の穴を通して、図 27(c)のよう にもってくる。最終的に、高温超電導線を銅電極を用いて NbTi 線と接続する (図 27(c))。銅電極はサファイア板を 用いて電位は浮いている。NbTi 線は細いため、図 27(c) のように銅電極 (円柱) に巻きつけ表面積をかせぎ、伝導 接着剤 (EPOTEK-H20E) で硬化する。NbTi コイルのも う一方は GND に落とす。表面積を稼ぐためコイルを支え るためのロッドにぐるぐる巻きにして接着固定する。

この配線において熱を発するのは77-300 K をつなぐ銅線 (断面積)である。抵抗を小さくするために銅線の断面積を むやみに増やせば、300 K の熱浴より液体窒素タンクへ熱 が流入し冷却溶剤の消耗が激しくなる。銅線の発熱をおさ えつつ、液体窒素タンクへの外部からの熱流入もなるべく 防ぎたい。そこで、冷却パワーに対しジュール熱が大体同じ となるように銅線の断面積を選択する。簡単な計算例を以 下に示す。 $P_{cool} = A \int_{77K}^{300K} K d\tau$ 。ここで、 $\int_{77K}^{300K} K d\tau \simeq$ 1000 W/cm である [72]。 $A = \pi r^2/L$ [cm]。r:線の半径 [cm], L:線の長さ [cm]。仮に、長さ 100cm、断面積 0.01 cm²の銅線を使用した場合、 $A = 0.01/100 = 1 \times 10^{-4}$



FIG. 25: (a)5K シールド内、STM 周りに取り付けた超電導コ イル断面図。(b)巻き線機によるボビンへの NbTi 線巻きつけ。 (c)超電導コイル外側に蓋をし隙間に接着剤を注入した。またボ ビン上部正面は単一原子蒸着ができるように削ってある。(d)シ ミュレーションによる STM 周囲にできる磁場分布。

[cm] となり、 $P_{cool} = 1 \times 10^{-4} \times 1000 = 0.1$ [W] が求まる。 次に、銅線が発する熱量を計算する。R = (比電気抵抗 [Ω mm]) x (長さ [mm]) / 断面積 [mm²] $\approx 0.2 \times 10^{-6}$ [Ω mm] $\times 1000$ [mm] / 1[mm²] $= 0.2 \times 10^{-3}\Omega$ となる。導線に 20A 流す場合、 P_{thermo} [W] $= RI^2 = 0.2 \times 10^{-3}\Omega$ x 20² = 0.08[W] の熱発生となる。

V. 磁性探針·作成注意点

試料のスピン偏極度ベクトルは、トンネル電流を測定す るだけで知ることができる。そのためには探針として磁石



GND補助線(High Tc 超電導線)

FIG. 26: 超電導コイルのための配線。大気より Cu 線、高温超 電導線を介して NbTi 線コイルに電流を流す。ヘリウムタンクは クライオスタット上部にて一点で溶接されているため、ヘリウム タンク底ではしっかり GND がとれていない。そのため高温超電 導線でヘリウムタンク底と窒素タンク上部を接続した。

の探針を使用する。

磁性探針の作成はスピン偏極 STM 測定の成功を左右す る重要課題である [67]。プローブ顕微鏡には主として STM と原子間力顕微鏡 (AFM) がある。AFM のカンチレバを 磁性探針とした磁気力顕微鏡 (MFM) では針からの漏れ磁 場を利用する。しかし、STM では漏れ磁場は大敵である。 漏れ磁場により微小なナノ磁石や単一原子のスピン偏極 度ベクトルが大きく影響を受けてしまう。そのため磁性探 針として、不純物がなく・安定なスピンをもたせるため、 超高真空中、2000 ℃で高温処理した W 探針に磁性薄膜 (1-10nm)を蒸着する手法がスタンダードである。スピン 偏極 STM で検出するスピン成分は $\vec{P}_s \cdot \vec{P}_t$ である。磁性探 針の \vec{P}_t に平行な \vec{P}_s 成分しか検出できない。試料のスピン を 3 次元的に検出するため、スピンの向きが分かった磁性 探針が必要である。

非磁性探針の場合、試料に仮に衝突し針先端が変形して



FIG. 27: 配線の都合上、超電導線を折り曲げる必要がある。超 電導線には臨界半径がある。今回使用した伝導線の臨界半径は約 10mm であった。(a) 液体窒素タンク底部にて直径 40mm のか まぼこ型のガイドを作成し、線をこれに沿わせて銅線と高温超電 導線を接続した。(b) 液体ヘリウムタンク上部にて直径 40mm の かまぼこ型のガイドにて高温超伝導線を 180 度曲げた。(c)STM 周囲にてヘリウムタンクを通っておりてきた高温超電導線を銅円 柱を介して NbTi 線と接続した。NbTi 線は直径 20mm の銅円 柱に巻きつけ接着固定した (EPOTEK, H20E)。

しまっても、伝導性があり、探針先端に原子スケールの凹 凸があれば探針として機能する。(実際、しばしば探針を 伝導性試料へあえて衝突させ、探針先端の酸化膜除去や探 針先端の形状の制御が行われる。)しかし、磁性探針の場 合、誤って衝突させてしまうと、探針先端の磁性薄膜が壊 れ、探針先端のスピンが変化してしまい、場合によっては スピン偏極度が消失しかねない。衝突の無いように慎重に 試料表面へ磁性探針を接近させ、無事にトンネル電流を検 出できたとする。(場合によっては、接近させた際に衝突 がなくとも、探針・試料間の接近に伴う電界の増加により、 探針先端の磁性膜の一部が試料表面上に落下することもあ る。)そして探針を走査し、表面形状を観察する。STM で は、探針から1Å の突起があれば、90%以上のトンネル電 流はそこより流れる。しかし、現実には針先端に理想的に 1つの突起がでていることは運に頼るしかないため、しば しば2カ所以上の突起が探針先端に存在し、2重(以上) に重なったような像が観察される事がある。そのような場 合、非磁性探針であれば、試料と探針間に強い電界を短時 間かける(電界パルス法:通常1V/1nA=10⁹ Ω のトンネル 条件で、電圧 4-10Vを約数から数百ミリ秒印加)ことで、 探針先端から試料表面に物質を人工的に移動させ、針先端 に1つの突起を生ずるようにする。磁性探針では、この 手法が無闇に使用できない。安易に、電界パルスをかける と、探針先端に試料物質または、探針先端の磁性薄膜が試 料表面に移動してしまう。

探針と試料の間には、STM 測定では常に電界がかかっている。試料探針間距離が 1nm で、1V の電位差がある 場合、その電界は 1×10^9 [V/m] に達する。この強い電界 により、探針や試料の原子を動かすことができるのだが、 注意しなければ磁性探針を容易に破壊してしまう。そのた め、スピン偏極 STM 測定では、強い電界はかけないこと が望ましい($\ll 10^{10}$ [V/m])。

また探針の走査スピードが速すぎると、フィードバック 回路(通常約1kHz)がおいつかず、試料表面の起伏に対 応できず瞬間的に探針試料間距離が縮まり強い電界のため 針先や試料が変形することがある(チップチェンジと呼ば れる)。これを防ぐため、探針の走査スピードは遅い方が よい(>0.5秒/走査ライン、512 ピクセル×512 ラインの 場合、一枚の画像を測定するのに 256 秒以上かかる)。

A. 磁性膜 / W 探針

多くのスピン偏極 STM で使用されている磁性探針は、 超高真空中で清浄化したタングステン(W) 探針に磁性物 質を蒸着させる方法で作られる。W 探針は大気中で化学 エッチングにより作製する。市販の多結晶 W線(直径は STM 装置ごとに最適な径があるがおよそ 0.2-0.5mm)を 使用する。目で見て黒く見える場合は酸化膜や汚れがある ので、紙やすり等で丁寧にこすりとる(銀色になる)。こ れを陽極とし、NaOH または KOH の溶液に漬ける(濃度 2 規定以上)。またはアンモニア水に食卓塩を過飽和させ たものでもよい。

図 28(a,b) に探針作製のモデル図を示す。Pt 線を陰極と してW線を溶液に漬ける。液面下の部分が錘の役割を果た す。3-4mm つけるとよい針ができやすい。W 線と Pt 線 の間に直流数 V かける。アンモニア水 (25%)+ 食卓塩 (過 飽和)を用いる場合は交流電圧を使う。探針は液面で作成 されるので、W線を円状に囲むようにPt線を形作ってお けば、W線は均一に外側よりエッチされ探針先端はW線 ほぼ中央にくる。Pt線は直径 0.5mm 程度のやや太めのも のがよい。細すぎると Pt線が声などでも振動し液面が揺 れ針形状がいびつになる。エッチ電流は数 mA から数十 mAに達し、泡がPt線周りに生じる。目で見て、きめ細か い泡が次々にできている程度がよい。泡が大きすぎる場合 は、探針形状がいびつになる場合がある。作成した針を、 光学顕微鏡 (x100) か電子顕微鏡で確認する。光学顕微鏡 (x100) でみて針先が見えないほどにとがっていれば大体先 端径は 100nm 以下である。W 線のエッチが始まっている 部分から、探針先端までの距離がだいたい W 線の太さ程 度であればよい (図 28(c.d))。作成した W 針表面には液中

の物質が付着している。純水 (80-100 度の湯) で針に吸着 したものを除去し、アルコールに浸してからよく乾かす。 最後に、フッ酸などの酸処理をして酸化膜を除去すること もある。探針を針ホルダーにセットする。

図14で示したように針ホルダーを針運搬ホルダーにセッ トして、STM チェンバの導入室へ入れベークして超高真 空となったら、探針をスパッタイオンガン (1-3 kV, 数 μ A) でスパッタするか、または金属球を探針の上 1-2mm ヘセッ トし探針へ負電圧 (-1~-3 kV) をかけながら希ガスを導入 し (10⁻³Pa) 探針先端をスパッタする。希ガスイオンは、 探針先端の急峻な電界で先端に集中するが、先端でなく針 の側面をたたくため、徐々にくびれ、ついには針先端部分 の数十から数百 nm 分がもぎ取れる。このもぎ取れた瞬間 に針は清浄で鋭くなり、針へ飛んでくるイオン量が大きく 増大する。イオン量が 10 μ A となるように探針への印加電 圧を制御すれば、最初 -2000V であった場合、10 分かけ て約 -1500V まで下がり、15 分後に突如 -500V まで低下 する [70]。この手法は特に self-sputter と呼ばれる。

続けて加熱を行う (図 14 参照)。加熱は電子衝撃法が 必須である。W 針先端と加熱用フィラメントの距離は 1-2mm がよい。フィラメントに電流を流し、W 探針に正電 圧+500~+1000V印加すれば、フィラメントからの熱電子 が加速され探針へ衝突する。熱電子量は電圧電源の電流 表示で確認できる (数 ~ 数十 mA)。特に針先端は鋭く電 界が急峻となり熱電子が集中する。2000K以上に瞬間的 にW探針の先端のみを加熱し、不純物をとばし単結晶化 させる。数秒以内で 20W (=500V×40mA) 以上まで何度 か加熱を繰り返す。多結晶 W線は通常 W探針軸方向に <110> 配向しているため探針先端には (110) 面がでやす い [45]。図 28(e) は市販の多結晶 W 線に X 線を照射し得 た X 線ラウエ回折像である。回折リングにコントラスト が生じていることから強い配向が確認できる。2000Kまで 加熱するため、探針ホルダーはW、Ta、Mo等の高融点物 質でつくるのが望ましい。

準備室内に電界放射顕微鏡か電界イオン顕微鏡が備わっ ていれば、W針先端の原子構造を確認できる [45]。Multichannel plate かまたは蛍光スクリーンがあり、探針に電 界がかける事ができればよい。負バイアス印加で電界放出 顕微鏡 (FEM: field emission microscopy)、He を 10⁻³Pa 程度まで入れて正バイアスを印加すれば電界イオン顕微鏡 (FIM: field ion microscopy) となる。金属板または球を探 針先端 1-2mm まで接近させるようにしておき、探針に負 バイアスをかけながら針先端から金属板または球への電 界放出電子量を測定することで探針先端の曲率半径が求ま る [45]。(おおまかに 1nA@300V で約 10nm, 1nA@1000V で約 100nm。) FIM 測定の際に、きれいな FIM 像がとれ る電圧以上の電圧をかけると、探針先端の原子が蒸発しは じめる。これを電界蒸発という。これを用いると探針先端 の原子像を観察しながら探針先端を清浄にできる。原子を 表す輝点が像中で動き、ある程度蒸発したところで少し電 圧を落とせば原子像がみえるので、W(110)などの面が見 えたところで電界蒸発をやめればよい。図 28(f) に実際に 室温で電界蒸発を行い得た探針先端の(110)面の FIM 像 を示す [45]。室温測定のためスポットはぼやけているが、 スポットは原子ステップの1原子を示す。対応する探針先 端の原子球モデルを図 28(g) に示す。同じ針から得られた FEM 像は、探針先端の仕事関数の分布に対応する。明る い部分は低い仕事関数を持つ面である。W(110)は回りの

探針先端に(110)面が析出すれば、探針先端につけた磁 性のスピンは主に形状異方性でなく、結晶異方性に依存 すると考えられる。径が 1000nm の探針の上の磁性膜は、 W(110)単結晶上の磁性膜と同様な磁気特性をもつと考えら れる。しかし、実際には、1000nmの径をもつ探針を作成す るのは容易ではない。100nm 前後の径では、形状異方性と 結晶異方性の双方が混在しており、さらに磁区構造もあれ ばより複雑な磁性探針となっていよう [45]。加熱した W 探 針に、準備室で磁性膜をエピタキシャル蒸着する。これまで W探針に蒸着され磁性探針として実際に機能することが確 認されてきた探針を紹介する。磁性物質により探針軸と平 行か直行のスピンをもつかを選択できる。探針軸と平行の スピン(試料の面直方向)をもつ探針は、Cr(<4nm)/W探 針、2-3nmCo/W 探針、GdFe/W 探針、Co(<2nm)/Au/W 探針が使用されてきている。探針軸と垂直のスピン(試料 の面内方向)をもつ探針は、Cr(>4nm)/W, Fe/W 探針、 Mn/W 探針、Co(>2nm)/Au/W 探針がある。中でも最も よく使用されているのは、Fe/W 探針と Cr/W 探針であ る。特に Cr や Mn は反強磁性体であるため、W 探針につ けた場合も原子間は反強磁性的に結合すると考えられ、強 磁性物質をつけた場合に比べ、探針先端からの漏れ磁場は ずっと小さい。磁性膜を蒸着した後に、500-600K 程度数 秒加熱することで、磁性膜をより原子スケールで平坦にで きる。また、強磁性物質 (Fe/W) をつけた場合は、準備室 に外磁場をかけられるようにしておけば、その方向にある 程度磁化させることもできよう。スピン偏極 STM では、 しばしば、STM 測定中に強磁性探針と試料に磁場をかけ、 探針の磁化を制御した実験も行われている。この場合、試 料か探針のどちらかは磁場に反応する強磁性、他方は外磁 場に影響されない反強磁性か非常に保持力の高いものを使 用する。

2009 年に初めて Fe/W 探針先端のスピン偏極度ベクト ルの測定結果が報告された [45]。18nm の曲率半径を持つ Fe/W 探針先端のスピン偏極度ベクトルは、41.5±2.5 %の 大きさを持ち、図 6 の座標を用いて θ_t =45-66° 傾いている ことが分かった。さらに 2013 年現在、同様の手法により Fe/W 探針で 40% (θ_t ~70°) [46]、Cr/W 探針で 10% [46]、 Mn/W 探針で 5-10% (面内) [47] が報告されてきている。 このような探針は、面内と面直の両成分を有しているた め、探針を針軸回りに回転する機構と組み合わせることで 試料のスピン偏極度ベクトル成分全て (P_x 、 P_y 、 P_z)を測 定できる。

また裏技的ではあるが、W 探針の加熱処理ができれば 準備室で磁性物質を蒸着できなくてもスピン偏極 STM 測 定が可能である。スピン偏極 STM の試料は磁性体である。 この試料に W 探針をトンネル状態まで接近させる。STM 装置内では、通常、バイアスは試料にかかる。探針を 1GΩ (=1V/1nA) 以上まで近づける。その状態で瞬間的に(数 ミリ秒程度) 1V を 10V にする。強い電界が瞬間的に探針 試料間に発生し、電界蒸発が生じる。試料に正バイアスを 印加すれば、試料の磁性イオンが探針先端に付着する。こ れで磁性探針となる [22]。4K 以下の低温では、単一磁性 原子が W 探針に吸着するだけで十分である [49]。室温で は、5nm 程度の磁性膜が吸着すれば磁性探針として機能す る [22]。効率的とはいえないが、この電界パルス法を用い て探針先端のスピン方向を変えることも可能である [22]。



FIG. 28: (a,b)W 探針の作成方法の模式図。(c,d) 作成した W 探針の走査電子顕微鏡像。側面 (c) と上面 (d) より観察。(e) 多 結晶 W 線の X 線ラウエ回折像。(f)W 探針先端の FIM 像と (g) 対応する球モデル、そして (h)FEM 像。

B. 磁化変調モード用探針

磁化変調モードでは、探針の磁化を高周波で 180° 反転 させながら STM 測定を行う。つまり、高周波で $\vec{P_t}$ を反 転させ、探針の検出するトンネル電流中の応答成分をロッ クインアンプを用いて検出、STM コントローラへと出力 し、STM 走査と同期させることで STM 像と磁気像が同 時に測定できる。図 29 にこれまで開発された測定手法を 示す。

仮に探針と試料のスピン偏極度ベクトルが平行であった場合、得られるトンネル伝導は $I_P = I_o(1 + P_s P_t)$ である。探針のスピン偏極度を 180 度反転させれば $I_{AP} = I_o(1 - P_s P_t)$ となる。これらの差は $2I_o P_t P_s$ となる。 $2I_o P_t$ は試料表面上で一定であるので、 P_s の変化のみを磁気像中のコントラストとして測定できる。この手法の大きな利点は、探針の磁化を制御しその応答成分のみをとらえることにより、試料表面のスピン成分だけを取り出せる点である。つまり、不純物、合金、非磁性下地金属の表面析出等、スピンに依存しない成分を取り除くことができる。

磁化変調モードを行う際は、通常市販されている超高真 空 STM 装置の探針回りを改造しなくてはならない。この ような探針は市販されていないため自作するしかない。磁 化変調モードでは軟磁性物質を探針として使用する。これ にカプトン被覆 Cu線を巻きつけ交流電流をながし、探針 の磁化を高周波で反転させる。これまでに報告された手法 では約 40kHz で交流電流(保持力以上の磁場が発生でき る電流)を流す。交流電流を流しながら STM 測定を行う ためには、磁性探針に磁歪が生じてはならない。磁歪が生 じると交流に応答して探針が伸縮し、探針試料間距離が変 化しトンネル電流が変化してしまう。しばしば、この磁歪 の影響を磁気応答と間違えることがあるので注意が必要で ある。そのため FeCoSiB アモルファスが使用される(磁 歪は <4×10⁻⁸、保持力は <10 μ T)。軟磁性体としてニッ ケルもあるが、ニッケルより作製した探針の内、うまく探 針先端の磁区が反転してくれる探針は十本に一本程度であ る。これまでに試料の面直方向スピン成分を検出できる探 針(図 29(a)) [11] と、面内成分を検出できる(図 29(b))2 種類の探針が開発された [13]。

面直の場合(図 29(a))はワイヤーからエッチした針に コイルを巻きつけるため、コイルの作る磁場と針軸は 平行となり、試料面直方向に磁場が印加されることにな る。そのため、高い保持力を持つコバルト試料での実験 報告例がある[11]。アモルファス線を購入し、W 針と 同様に化学エッチにより探針を作成する。但し、溶液は HF(40%):HCl(32%):H₂O=1:1:3を使用する。この探針に 直径 0.05mm 程度の超高真空対応ポリイミド Cu 線を巻く (10巻き程度)。線は細く切れやすいので慎重に扱う。真空 手袋をして、ピンセットを用いる。見えにくい場合は顕微 鏡等を使う。

面内成分をとらえる手法 (図 29(b)) では、リングを探針 として使用する。アモルファス膜(厚さ25µm)から切り 出したリングの一部にコイルを巻き交流電流(I_m)を流す。 この場合、発生する磁場はリング内に閉じ込められる。コ イルにより生じた磁場は、リング内をとおり外に漏れる ことはない。リング状の探針を作成する場合には、アモル ファス膜にリング型のレジストシールをはり、アモルファ ス膜の裏面全面にテープを張り付ける。図 30(a) にリング 針の電解エッチ方法を示す。エッチは主に界面で起こる。 膜を溶液にゆっくりつけていく。すると、リング状のシー ルを張った部分だけがエッチされずに残る。さらに探針と する部分は紙やすりで研磨する。粒径 10µm, 6µm, 1µm, そして 0.25µm の紙やすりでそれぞれ 5-10 分研磨する。さ らに、水素雰囲気中で 513K で 3 時間ほど加熱する (これ より高温では硬磁性になるので注意)。ポリイミド Cu 線 を巻きリング型探針とする。図 30(b) に実際に作成したリ ング型探針を示す。コイルが振動するのを防ぐために、コ イルは超高真空用エポキシ接着剤でリングにしっかり固定 する。超高真空チェンバ内でスパッタし、鉄を約数原子層 分蒸着し探針とする。

注意すべき点は、リング探針に巻いたコイルに、ロック インアンプより直接変調信号を入れてはならない。市販の 数百円程度のオーディオトランスフォーマーを間に入れる。 コイルの抵抗は 1-2Ω であるが、ロックインアンプの出力 抵抗は 50Ω だからである。フェライトなどの高周波対応の トランスフォーマーがよい (Load impedance は 4Ω 程度)。 ロックインアンプからの変調信号 (例えば 1mV)をオーディ オパワーアンプ (市販で数百円程度) に入れ、1mA の変調 信号としてからオーディオトランスフォーマーに入れる。

C. 半導体磁性探針

磁性膜/W 探針と磁化変調モード用探針は21世紀に なって開発研究がなされてきたが、1990年代にすでに開発 がすすめられた磁性探針がある。それが半導体 GaAs 探針



FIG. 29: スピン偏極 STM:磁化変調モード。(a) 面直磁化測定 用と(b) 面内磁化測定用。



FIG. 30: (a) 磁化変調モード用、リング型探針の作成方法。(b) 作成したリング型探針の写真。

である。この探針は現在までに実用には至っていないが、 多くの研究開発が行われ、またスピンを光を用いて正確に 制御できる点から理想的な磁性探針としての可能性を残し ている。

光とスピン偏極 STM の係わりについて多少述べる。試 料に正バイアスをかけた際、探針のフェルミ準位から試料 の空準位に入った電子は不安定なため、試料のフェルミ準 位へ落ちる。その際に光が発生する。この光を検出し磁性 試料のスピン成分をとらえる実験が 1992 年 Alvarado 達 により報告された。

強磁性 Ni 探針から GaAs(110) 試料に スピン偏極電子を注入し、発生する光を検出しスピン偏極 度約 30 ± 10%が得られた [57]。1994 年同様の手法で、非 磁性W探針から Co 試料へ電子を注入し発生光子を測定し 約10%のスピン偏極度が [58]、1996 年非磁性W探針と Fe 膜試料を用いて約40%のスピン偏極度が検出された [59]。 しかし、1998年 Pierce 達は非磁性W探針ととても平らな Fe-whisker 試料を用いた実験で0±2%のスピン偏極度を 報告した [60]。実験結果の矛盾が生じるに至り測定により 得られた偏極度の意味するところが疑問視された。結局、 非磁性W探針と非磁性 Ag 膜試料でも約 40%の偏極度が検 出され、探針が非対称な形状をしている場合、光の偏光に 強く影響をあたえるため非磁性試料でも偏極がでてしまう

ということが分かった [60]。

そこで光を検出するのでなく、光を照射しスピン偏極電 子を励起し、これを利用して試料のスピン情報を取り出す 実験が GaAs 探針を用いて行われた [61-65]。GaAs に右回 り・左回り円偏光を照射すると価電子帯のP3/2軌道から 伝導帯の S1/2 軌道へ -50%、+50%スピン偏極して電子を 励起できる。しかしこの手法でもスピン情報を検出する事 に成功しなかった。実験が大気中で行われたため GaAs 探 針表面についた水や酸素等の分子によるスピン散乱等が考 えられる。さらに、2001年、強磁性 Ni 探針と GaAs(110) 試料を用いた実験で、テラスにくらベステップでのスピン 緩和時間は急激に小さくなることが示された [66]。GaAs 探針の探針先端原子のスピン緩和時間はとても小さいこと が考えられるためスピン情報が得られなかったと考えられ る。唯一、GaAs テラス (>50nm 幅) から Fe/W 磁性探針 へ電子をトンネル遷移させた際に、スピン偏極トンネル電 流量の右回り・左回り円偏光依存性を確認した報告がある [25]。これは、超高真空中で GaAs 探針を作成し、実験を 行えば、GaAs 探針が機能する可能性は残されていること を示唆する。

VI. 磁性試料·作成注意点

スピン偏極 STM 測定全般についていえる最も大事なこ との一つは、磁性探針を用いて試料を測定する前に、試料 を非磁性の探針を用いて慎重に調べることである。スピン 偏極 STM で検出するのは、スピン偏極電子状態である。 そのためには、非磁性探針を用いて spin-up と spin-down の合わさった電子状態を確認する必要がある。とくに磁性 表面では、高いスピン偏極度をもつ表面状態ピークが存在 する。そのピークのエネルギー位置を正しく探ることが大 事である。磁性探針にした場合、このエネルギー付近で、 分光モードや磁化変調モードで dI/dV 像をとれば磁気像 が得られる。もし、試料表面にスピン偏極電子状態がなけ れば、その試料上でのスピン偏極 STM 測定は不可能に近 い。バルク中で高いスピン偏極度をもつ試料であったとし ても、表面では、その電子状態はバルクと全く変わること があるため注意が必要である(表面での対称性の崩れの ため)。

非磁性探針で、もうひとつ確認しておかなくてはならな いことは不純物原子が表面にどの程度存在するかである。 試料表面に存在する不純物には2種類ある。真空チェンバ 内の残留ガスによる吸着原子と、試料内部に含まれており 加熱等の試料処理の際に表面に出てくる析出原子である。 STM 測定では、原子オーダーで平らでかつ下地の原子配 列がわかっている単結晶を使用する。多結晶の場合、平坦 な面が結晶粒界等により析出しにくい。平らにするため に、超高真空中で試料をへき開するか超高真空中で高温ま で加熱する。表面に厚く不純物膜(酸化膜等)がある状態 で加熱を行うと、表面で歪みが生じ多結晶化する場合があ るので注意が必要である。

いかにして不純物の少ない試料表面を得るかのノウハ ウは、清浄処理条件を変えてはその試料表面をSTM 原子 像や分光による化学同定から探り、みつけなくてはならな い。不純物は、Ar⁺スパッタと加熱処理を繰り返すこと により除去するのが一般的である。LEED や Auger 分光 等のほかの手法を用いて不純物が検出できない場合でも、 STM で観察した場合はその高分解能ゆえに、まだ不純物 原子が観察されることがよくある。酸化物、炭化物、硫化 物が1原子層以上、試料表面にある場合、トンネル分光 曲線を測定すると金属試料であってもギャップが確認でき る。不純物が1原子層以下であれば、STM 原子像から不 純物原子の数を数え、下地の金属原子の数で割ることで、 その表面領域での不純物量がえられる。磁性金属表面での 分光曲線は、しばしば表面電子状態ピークをもつが、不純 物原子位置ではそのピークが消滅していることが多いこと から化学同定できる。不純物原子の量は1%以下が望まし いが、10%でもスピン偏極 STM 測定を行うことが可能で ある。試料表面原子の約 20%が不純物原子でおおわれて いる場合、スピン偏極 STM 測定を行うのは極めて困難で

ある。 不純物の全くない試料は存在しないが、不純物が表面に 付きにくい安定な Au(111) が磁性試料の基板として用いら れることがよくある。しかし、多くの場合、磁性金属に比 べて貴金属の表面エネルギーは低いため、貴金属と磁性金 属が接する界面約 6 原子層は合金化し、場合によっては貴 金属が磁性間膜の上に析出する。バルクでは合金とならな いとされる鉄と金でも界面では合金化してしまう [55, 56]。 参考までに代表的な金属の表面エネルギー [mJ/m²] は、 Fe: 2550, Co: 2550, Ni: 2450, Cr: 2400, Mn: 1600, Au: 1550, Ag: 1250, Cu: 1850, W: 3300, Pt: 2550, Ir: 3100 である [71]。

そのため、試料表面が本当に磁性物質であるのかを、非 磁性探針を用いて調べなくてはならない。異なる元素は異 なる電子状態を持つため、STM 原子像上で異種原子は見 かけ上、高さが異なって観察される。2種以上の原子が確 認できた場合は合金化していると考えてよい。原子の化学 同定は、分光を測定することで可能である。幸いにして、 1990年代から現在にいたる約20年の間に、多くの物質表 面での電子状態ピークが検出されてきた。電子状態ピーク のエネルギー位置は物質固有であるため、物質の化学同定 に利用できる。たとえば、Fe(001):+0.2V [48], Cr(001):0V [6], Co(0001):-0.3V [18], Mn(001):+0.8V [24] 等が知られ ている。スピン偏極 STM の実験の多くは、これらのこと を踏まえ、合金化の少ない比較的単純な系が試料として選 ばれてきている。スピン偏極 STM による合金膜の研究は、 規則合金膜: NiMn [42] と AuMn [26] についての研究が ある。

以上のように非磁性探針を用いて、スピン偏極 STM 測 定に進む前に知っておく必要があるべきことは、

- 1. 表面が原子オーダーで平坦か、
- 2. 合金化はどの程度か、
- 3. 表面状態ピークはあるか、
- 4. 不純物原子は十分少ないか、

である。そうでなくては、磁性探針を用いてスピン偏極 STM 測定を行った際に、試料の各原子位置より得られた 分光値の違いが試料のスピンの違いによるものであるのか 判断できない。

原子スケールで平らな表面をもつ試料がもとめられる。 具体的には、表面傾斜は、100nm 領域内に20原子ステッ プ以下、つまり原子テラス幅5nm 以上は必要である。そ のため、多くの場合、鏡面で傾斜のなるべく小さい単結晶 が試料として用いられる。単結晶として、実際にこれまで スピン偏極 STM で使用されたものは、Fe-whisker 単結晶 (市販されていないため化学気相成長法により自作する)、 Co単結晶、Cr単結晶、下地として非磁性のW、Mo、貴金 属(Cu,Au,Ag,Pt,Ir)単結晶がある。いずれの場合も、試 料の取り扱いには細心の注意を要する。試料、試料ホル ダー、探針、超高真空チェンバ内に入るものは、基本的に 素手で触れないことが望ましい。市販の真空用手袋を使用 する。また、不用意にピンセット等で強い圧力や傷をつけ てしまうと、その箇所が多結晶化してしまい局所的に表面 にどの面がでているのか分からなくなり、磁性もまったく 変わってしまう。単結晶は多結晶に比べて非常に軟らかい ことが多いため注意が必要である。

単結晶試料をSTMの試料ホルダーに固定する。試料ホ ルダーは、市販のSTM装置毎に形状・寸法はまちまちで あるが、板ばねを用いて固定することが多い。板ばねを試 料ホルダーに固定するためには、スポット溶接が簡便であ る。真空内の溶接にはハンダは使用できない。溶接時に試 料ホルダーの物質が試料へ飛び散らないように注意する。 小型のスポット溶接機(数万円程度)が市販されているの で、あれば便利である。スポット溶接が困難な場合は、ね じで板ばねを固定する。試料と試料ホルダーがしっかり固 定されていない場合、STM測定時に大きな振動が発生し 測定が不可能となる。特に、分光モードを行う場合には致 命的となりかねない。

STM 装置によっては、探針・試料回りに磁石が用いられ ている場合もある。この磁石からの漏れ磁場はスピン偏極 STM 測定において致命的になりかねない。必ず使用前に 探針・試料位置での漏れ磁場はどの程度か確認する必要が ある。エディカレントダンピング用の磁石が取り付けられ ている STM 装置でも、磁石からの磁場は互いに打ち消し あうように配置されているため磁場は1G程度に抑えられ ていることが多い。試料ホルダーとして、非磁性でかつ高 温に耐えうる Taや Moがよく使われる。(高融点材料のた めスポット溶接が困難である。) 試料表面の清浄化・平坦 化には、試料によって温度は異なるが、720-1000K 近くま で加熱処理する必要がある。また、高融点の試料(W等) では 2000K 以上の加熱処理が必要な場合もある。試料に よっては、高温で試料ホルダーの材質として使われる Ta やMoと合金化してしまうものもあるので注意する。STM 装置の粗動には移動可能範囲は、数 mm の範囲なので試 料の大きさは10mm以下が望ましい。

超高真空・高温対応の伝導エポキシ(銀ペースト等)を 用いて試料を試料ホルダーに固定することも可能である。 しかし非常に注意が必要である。もし僅かでも試料表面 に銀ペーストが付いてしまった場合、高温にした際に銀が 試料表面に拡散してしまい試料が台無しとなる。わずかに 銀ペーストを試料ホルダーにつけ、試料をその上にそっと のせる。銀ペーストが試料表面にせりあがってきたりする ことのないように十分注意する。銀ペーストのみの固定で は、弱いこともある。筆者は二度、銀ペーストのみで固定 した試料が、移動中の僅かな衝撃で真空チェンバ底へ落下 していくのも見た経験がある。板ばねで固定し、銀ペース トは補助的に使うのがよい。また、試料がチェンバの底へ 落ちてしまうと取り出すためにはチェンバを解体しなくて はならない。落下しても底まで落ちぬように金属網を敷い ておくとよい。特に、超高真空中では大気中よりも摩擦は 約1桁増す。真空中での探針・試料の運搬には細心の注意

が必要である。落下した試料表面がチェンバと接していれ ば表面が多結晶化してしまい原子レベルで平坦な面がでな くなる。

慎重に試料を試料ホルダーに取り付けられたとする。これを、超高真空チェンバの導入室にセットし、排気し、準備室へ移動する。へき開により清浄な試料表面を得る場合は、準備室で試料に機械的に力をかけられるような機構を作っておけばよい。準備室でへき開し、試料をすぐにSTM 解析室へ導入する。

へき開でなく、大気にさらされた試料を測定する場合は、 準備室で、スパッタイオンガンからの希ガスイオンビーム を試料表面に照射し、試料表面についた酸化膜等を除去し なくてはならない。厚い酸化膜や表面研磨がある場合、表 面(数~数+nm)が多結晶化していることもあるため、ス パッタにより多結晶膜を取り除いてから加熱する。いきな り加熱すると単結晶全体が多結晶化しかねない。

スパッタ処理を行う際は、準備室のイオンポンプを止め (またはバルブ等で隔離し) ターボ分子ポンプで排気を行 う。準備室のマニピュレータに試料をセットし、スパッタ イオンガンの方へ試料を向ける。Ar ガスを準備室へ、バ リュアブルリークバルブ等を用いて僅かに導入し10⁻⁷Pa から 10⁻³Pa 台で (スパッタガンの性能により異なる)、試 料表面へ約 1-3µA/(10mm²) のイオンビームを照射する。 また、Ne ガスも使うことができる。加速電圧は 0.5 から 1kV を用いることが多い。スパッタ処理を長時間行うと 逆に表面が荒れてしまう。よいスパッタ条件が見つかるま では低い電圧 (<1kV) でスパッタを 10-20 分しては加熱す る。磁性体試料によっては相転移温度が低い場合があるの で注意する。STM で表面を確認しながら平坦で清浄な表 面が得られるまでスパッタと加熱のサイクルを繰り返す。 準備室に LEED や Auger 分光がある場合は、これらで回 折スポットや不純物量を確認しながらスパッタ処理をすれ ばよい。

準備室のマニピュレータには試料の加熱機構が必要であ る。マニピュレータの試料ステージは、アース(チェンバ) から絶縁素子(マコールやアルミナ)を用いて絶縁される。 マニピュレータは市販もされているし、安く仕上げたい場 合は自作すればよい。フィラメントとして、市販のW線 (直径 0.1-0.2mm)がよく使われる。超高真空内での加熱 には、通電加熱と電子衝撃の二つがよく使われる。通電加 熱では、電流用に2ケーブル、電子衝撃では最低3ケーブ ルは必要である。準備室の真空窓よりパイロメータを用い て試料表面の温度を確認する。熱電対を試料近くへ取り付 けることもあるが、試料表面との温度差が100-200度近く になることもあるので、パイロメータを用いて校正するの が望ましい。

通電加熱法では、試料下 1-2mm にセットしたフィラメン トに電流を流すだけでよい。フィラメントからの輻射熱で 加熱する。電子衝撃法の場合、試料ホルダはフィラメントと 絶縁でなくてはならない (>1000MΩ at 1kV)。試料~+500 から+1000V 電圧をかける。フィラメントに徐々に電流をな がす。フィラメントと試料の間は約 1-2mm がよい。約 2A 前後でフィラメントから熱電子が試料へ加速され試料を加 熱する。mA オーダーに達する (例、1000V×10mA=10W)。 準備室の真空窓より、パイロメータで試料表面の温度を確 認しながらゆっくり電流をあげていく。加熱中に真空が 10⁻⁶Pa 以上にならないように注意する。加熱により試料 や試料ホルダーから吸着ガスが脱離しはじめる。ガスが出 切るまで待つ。試料の汚れ具合により数分から数日かかる こともある。試料により平坦な表面を得るのに必要な温度 は異なるため、文献等で調べておく必要がある。必要な温 度まであげる過程で、どのような不純物が表面に析出して くるのかは Auger 分光や LEED 等で確認できる。

STM 測定前には、試料をスパッタし、目的の温度まで 加熱し表面を平坦化する。加熱温度や加熱時間により原子 テラス幅が変わる。

磁性試料を作製するために、準備室で単結晶試料に磁 性物質(金属、分子等)をエピタキシャル蒸着すること が多い。蒸着量の校正は水晶振動子を用いた膜厚モニター や、RHEED(reflection high-energy electron diffraction)、 MEED(midium-energy electron diffraction)等の電子回折 法を用いてあらかじめ較正しておく。このように、作成し た試料をトランスファーロッドで解析室に移動し、STM 装置内にセットする。

単一磁性原子を蒸着する場合は、表面拡散を抑えるため 試料を 4-10K 程度に冷やす。解析室の低温 STM クライオ スタットに試料をセットし冷やし、解析室の蒸着器を用い て、クライオスタットのシャッターを開き、熱流入をなる べく防ぐために短時間で 0.01 原子層以下の蒸着を行う (図 8, 図 24 参照)。

VII. 定電流モード・測定注意点

スピン偏極 STM 磁気イメージングにおいて、最もシン プルな方法が定電流モードである。STM では、探針を試 料表面で走査した際に起伏に応じてトンネル電流値が一定 となる様に探針が上下する。試料表面各位置での探針の高 さ*z*(*x*, *y*) をマッピングして、試料表面凹凸像を得る。市 販のすべての STM にはこの機能が付いている。この手法 で得た凹凸像を通常 STM 像と呼ぶ。

図 31 に測定図を示す。探針を指定した電流値 (通常約 10pA-1nA 程度)を保つようにフィードバックが z ピエゾに かかっている。スピン偏極トンネル電流は、簡単に $I=I_o(1+\vec{P}_s\cdot\vec{P}_t)$ とかけると示したが、ここではもう少し丁寧に記 述しよう。ただし、簡単のために, 探針と試料のスピン偏極度ベクトルが平行・反平行な場合を考える。

$$I(V)_P \propto \int (\rho_s^{maj} \rho_t^{maj} + \rho_s^{min} \rho_t^{min}) \exp(-2\kappa(V) z_P) dV$$

$$I(V)_{AP} \propto \int (\rho_s^{maj} \rho_t^{min} + \rho_s^{min} \rho_t^{maj}) \exp(-2\kappa(V) z_{AP}) dV$$

 $I(V)_P \geq I(V)_{AP}$ は、探針と試料のスピン偏極度ベクト ルが平行と反平行なときのトンネル電流を示す (I(V)曲線)。 ρ_s は試料の局所電子状態密度 (LDOS)、 ρ_t は探針の LDOS を示す。 $z_P \geq z_{AP}$ は、探針と試料のスピン偏極度 ベクトルが平行と反平行なときの探針試料間距離を示す。 $\kappa(V) \propto 1.02\sqrt{\Phi \pm eV/2}$ 、 Φ は仕事関数。 $\rho^{maj} \geq \rho^{min}$ は多数 (majority) と少数 (minority) スピン状態密度を示 す。0V はフェルミ準位に相当する。定電流モードでは、 $I_c = I(V)_P = I(V)_{AP}$ となるように測定回路が設定され ている。

図 31 で具体的なスピン偏極 STM の定電流モードをみ てみる。探針と試料のスピン偏極度ベクトルが平行の場 合、電子状態間のトンネル遷移は増すので、試料探針間距離hでは多くの電流が流れすぎてしまう。そのため、探針を $z_P = h + \Delta h$ まで遠ざける必要がある。しかし、反平行の場合は電子状態間の遷移は減るため、距離hではトンネル電流量は少なくなる。探針を $z_{AP} = h - \Delta h$ まで近づけることで、定電流 I_c が得られる。結果として試料 \vec{P}_s の分布を高低差 $(h + \Delta h) - (h - \Delta h) = 2\Delta h$ としてSTM像中でとらえる事ができる。 $2\Delta h \propto 2|\vec{P}_s||\vec{P}_t|$ である。

同じ試料表面に対して、非磁性探針を用いて得た STM 像と、磁性探針を用いて得た STM 像を測定し、双方の STM 像中の高低差を確認し違いがあれば、P_sが試料表面 上で異なっていることを意味する。理想的には全く同じ領 域を異なる探針で測定したいのだが、現実には不可能に 近い。そこで、単結晶に磁性薄膜を蒸着し、試料全体にわ たって同じ磁気構造をもつような試料を作成して実験は行 われる。また、非磁性探針で分光測定(分光モード参照) を行い、スピン偏極電子状態ピークのエネルギー位置が分 かっている場合は、そのエネルギーにバイアスを合わせて 走査すればよい。

「非磁性探針と磁性探針で得た STM 像の高低差を測定 すればよい」と、言葉で述べれば単純であるが実際に実行 するのは難しい。この手法は、STM 像中の高低差からス ピン偏極の是非を議論する。試料表面の1原子ステップの 高さに対して、スピン依存による高さの変化は大きくても ステップの高さの約10%である。たとえばステップ高さが 150pm であればスピン依存は約15pm である。もし試料 表面に不純物や合金化等による異種物質があれば、これら の凹凸は数 pm から数+ pm あるため、スピン情報は容易 に打ち消される。また、数 pm の信号を精度よく捉える事 が出来るほどの低ノイズ環境が要求される。定電流モード は、歴史的に最初に行われたスピン偏極 STM 実験である が [3]、あまり有効な手法とはいえない。非磁性探針でみ た原子配列の対称性と、磁性探針でみたスピン配列の対称 性が異なる場合に、スピン情報を測定できる [16]。

また、探針についても試料同様に不純物や合金化を考慮 しなくてはならない。W 探針に 3d 磁性金属を蒸着する手 法を用いれば合金化は生じない。やっかいなのは、超高真 空中の残留ガス分子が探針に吸着する場合である。実際、 この現象はしばしば測定中におこる。その場合、探針が特 殊な電子状態をもち、STM 像中の原子の凹凸が反転して 見える事もある。そのため単純に非磁性探針と磁性探針の 見え方の違いが、スピン偏極によるものと断定するには注 意が必要である。何本かの磁性探針をもちいて再現性よく 違いが見えた場合に、スピン情報をとらえていると考える。

VIII. 分光測定・注意点

A. 定距離モード

試料表面の形状だけでなく、化学同定が可能で、さらに電 子状態を直接観察できる手法が分光モード(STS: scanning tunneling spectroscopy, 走査トンネル分光)である。分光 測定は、通常、市販のSTM装置にもそのための回路が付 いている。市販のSTMを購入する際に、分光測定機能が 組み込まれているか確認しておくとよい。

定電流モードでは、常に探針・試料間にフィードバックが かかっており、試料探針間距離の変化しか測定できなかっ



FIG. 31: スピン偏極 STM: 定電流モード。

た。しかし、分光モードでは、フィードバックを切り、探 針試料間距離 zを固定した状態で試料へのバイアス電圧を 変化させトンネル電流の変化 I(V) 曲線を測定することで、 試料の電子状態 ρ_s が測定できる。具体的には $V = V_s$ で zを決めフィードバックをきり、-3V から+3V の範囲内で電 圧を変化させ I(V) を測定する。これより高いバイアス印 加では、強電界により試料または探針先端の原子が動いて しまうおそれがある。分光曲線の負バイアス側では、主に、 試料のフェルミ準位から探針の空準位へのトンネル遷移を 測定し、正バイアス側では、主に、探針のフェルミ準位か ら試料の空準位へのトンネル遷移を測定している [68]。

$$I(V) \propto \int_{0}^{+eV} \rho_s(E_F) \rho_t(V) \exp(-2\kappa(V)z(V_s)) dV + \int_{-eV}^{0} \rho_s(V) \rho_t(E_F) \exp(-2\kappa(V)z(V_s)) dV$$

前項がV < 0、後項がV > 0を主に表す。但し、 $2\kappa(V) \sim \sqrt{\Phi \pm eV/2}$ である。このことは、分光を用いて試料の空準位の電子状態 $\rho_s(V)$ は測定可能であるが、フェルミ準位より 1eV 以上低い試料の電子状態を検出することは、不可能に近いことを示唆する。

通常、測定条件にもよるが、1 つの分光曲線を数十ミリ 秒から数秒の速さで測定する。典型的なバイアスのランピ ングスピードは約 10-100V/s。たとえば、-3V から+3V を 60V/s で測定すれば、1 つの分光測定に 0.1 秒かかる。分光 曲線は各バイアスでトンネル電流値を測定したものである。 たとえば、-1V から+1V の範囲内で I(V) 曲線を測定する 場合、この曲線を何点で測定すべきであろうか。室温 300K での温度によるエネルギーのゆらぎは、 $k_BT \sim 25 \text{ meV}(k_B:$ ボルツマン定数、T:温度 [K]) であるので、これより小さな 電圧幅でデータ点をとっても意味がない。2V/0.025V=80 点で十分である。低温 4K であれば、 $k_BT \sim 0.35 \text{meV}$ とな るので、点数は 2V/0.00035V~5714 点まで増やせる。よ り統計誤差 ($1/\sqrt{N}$; N:測定回数)を小さくするために、数 十から数万の分光曲線を測定し平均化することもしばしば 行われる。

各ピクセル位置での高さ (z) と分光曲線を測定しながら 走査する手法がある。この手法を CITS (current imaging tunneling spectroscopy) と呼ぶ。図 32(a) に配線図を示す。

以下に CITS を用いた測定方法を述べる。まず通常の STM 像で、I(V) 曲線を測定したい領域を見つける。その 領域を例えば 100×100 ピクセルで測定するとする。最初の ピクセル位置で、フィードバックがかかった状態で探針の 高さ $z(V = V_s)$ が決まる。なお、この探針位置 z(x, y) は 定電流モードの像と等価である。z ピエゾを安定させるた めに約数ミリ秒以上待つ。

同じピクセル位置で、フィードバックを切り z を固定し *I(V)* 曲線を測定する。その後、再びフィードバックをオン にして 2 つ目のピクセルに移動する。これを 100x100 ピク セル=10000 回繰り返す。1 つのピクセルで通常 0.1-0.2 秒 かかるとすれば、1 つの CITS 測定を行うのに約 1000-2000 秒かかることになる。分光測定中はフィードバックが切れ ているため、その間に外部振動が入れば探針が試料表面 と衝突しやすい。1 つの分光曲線の測定にあまり長い時間 (>1 秒) をかける際は注意が必要である。

この CITS 手法の利点は、定電流モードと分光モード (I(V))をほぼ同時に測定できることである。CITS を行 うことで図 4 に示したように、同じエリアの表面凹凸像と 分光像 (→磁気像)がほぼ同時に得られる。分光モードで は、しばしば I(V) 曲線を測定するだけでなく、その電圧 微分の微分伝導曲線 (dI/dV 曲線)をとって解析をおこな う (図 2 と図 3 参照)。I(V) 曲線の微分を取ることで積分 がはずれ、 $dI/dV \propto \rho_s \rho_t \exp(-2\kappa(V)z(V_s))$ となり、より 直接、試料の電子状態がわかる。 \vec{P}_t に平行な \vec{P}_s では

$$dI/dV_P \propto (\rho_s^{maj}(V)\rho_t^{maj}(E_F) + \rho_s^{min}(V)\rho_t^{min}(E_F)) \times \exp(-2\kappa z_P(V_s))$$

反平行な場合、

$$dI/dV_{AP} \propto (\rho_s^{maj}(V)\rho_t^{min}(E_F) + \rho_s^{min}(V)\rho_t^{maj}(E_F)) \times \exp(-2\kappa z_{AP}(V_s))$$

となる。ここでは正電圧側の dI/dV を記述した。

 $z_P = z_{AP}$ となる電圧 ($V = V_s$)をうまく選んで dI/dV_P と dI/dV_{AP} を測定すれば、 $\exp(-2\kappa z_P) = \exp(-2\kappa z_{AP})$ となり、既に図 3 で示したように、 dI/dV_P は大きく、 dI/dV_{AP} は小さくなり、その差が図 4 の分光中ではスピン コントラストとなる。dI/dVの非対称性をとれば試料と探 針のスピン偏極度成分が得られる。注意すべきは、磁性体 の場合、フェルミ準位近傍の電子状態はスピン偏極してい るため、 $z_P \neq z_{AP}$ となり、正確なスピン偏極度は dI/dVを規格化しなくては得られないということである。これま でに出版されたスピン偏極 STM の論文でも、この点をあ いまいにしている論文が多々ある。計算シミュレーション で同じような結果を得たのでそれでよしとしているが、正 当なやり方ではないと考える。逆に言えば、それだけスピ ン偏極 STM により精密な実験データを得ることは難しい のである。もし $V = V_s$ で本当に $z_P = z_{AP}$ である時に、 その非対称性 $(A_{dI/dV})$ をとれば、

$$\begin{split} A_{dI/dV} &= \frac{dI/dV_P - dI/dV_{AP}}{dI/dV_P + dI/dV_{AP}} \\ &= \frac{\rho_s^{maj} - \rho_s^{min}}{\rho_s^{maj} + \rho_s^{min}} \frac{\rho_t^{maj} - \rho_t^{min}}{\rho_t^{maj} + \rho_t^{min}} \\ &= P_{sample} P_{tip} \end{split}$$

となり、試料のスピン偏極度が求まる。このことから、 $dI/dV = dI_o/dV(1 + \vec{P_s} \cdot \vec{P_t})$ と考えることがしばしば ある。ただし、これは $z_P = z_{AP}$ である仮定した場合なの である (図 33 参照)。

dI/dV 曲線は、I(V) 曲線を数値微分することにより求 められるが、装置の不具合によってはI(V) 曲線では目立 たなかった微小な振動も、微分することにより大きな振動 として dI/dV 曲線中に現れ、試料の電子状態が振動に埋 もれてしまうこともある。そこで、ロックインアンプを用 いた分光モード測定も広く行われている。

ロックインアンプを用いた dI/dV 曲線測定の際も、I(V)曲線測定と同様にフィードバック回路を切り V = V.で、 zを固定し、バイアス電圧を±3Vの範囲内で変化させ分 光曲線を測定する。図 32(b) に配線図を示す。STM 装置 毎の電流増幅アンプによるが、そのカットオフ周波数は、 だいたい数百 Hz から 50kHz である。例えば、10⁷ 増幅で 50kHz、10⁹ 増幅で 1kHz。カットオフ周波数より低い周 波数 f (数百から数十 kHz) で、試料バイアスに変調(振 幅約数十 μV~20 mV)を加え、探針が検出した電流信号 をロックインアンプに入力し周波数 f の信号をとりだし $\Delta I/\Delta V$ の信号を出力する。これをSTM コントローラの 外部入力端子より取り込み、バイアス電圧増加と同期させ ることで dI/dV 曲線を得る。ロックインアンプを用いて dI/dV 曲線を測定する際は、バイアスのランピングスピー ドを遅くしなくてはならない。つまり、dI/dV 曲線の1点 あたりに要する時間を、ロックインアンプの時定数よりも 長くしなくてはならない。例えば、時定数 1ms で、分光 曲線を-2Vから+2Vまで25mV/点で測定する場合、測定 点は160点必要である。1点につき1ms以上必要なので、 1つの分光曲線を得るのに160ms以上かける。そのため、 4V/160ms=25V/s 以下のランピングスピードに設定すれ ばよい。

また、ロックインアンプでは、位相の制御も重要である。 簡単なやりかたであるが、zピエゾに電圧をかけて、探針 を試料から離した状態で位相調整してロックインアンプか らの出力信号を0にする。そののち、zピエゾを伸ばして 再びトンネル状態にした際、位相は90度ずれ出力は最大 となっていると考えてよい: $Q = CV = CV_o \cos(wt + B)$ $\rightarrow I = \Delta Q / \Delta t = C V / dt = C V_o w \sin(wt + B)$ 。これら のパラメータの調整に不備があると、出力される dI/dV値が負の値を示したり、反転したりする。そのため、I(V)曲線もあらかじめ測定しておき、これを数値微分して得た dI/dV曲線とロックインアンプで得た dI/dV曲線が同じ 形をしていることを確認するのがよい。

B. 距離変動モード (ロックインアンプ使用磁気イメージング)

STM スピンイメージングモードには、CITS 以外にもう 一つある。分光曲線を測定せずに、 $\Delta I/\Delta V$ 像だけをロッ クインアンプを用いて直接測定する方法である。図 32(c) にその様子を示す。図 32(c) は図 31 と似ていることから分 かるように、この手法ではフィードバックは常にかかって いる。基本的には通常の STM 像測定と変わらない。ただ し、探針からのトンネル電流をロックインアンプへ入力し、 ロックインアンプから出力された ΔI/ΔV 信号を STM コ ントローラの外部入力端子より取り込み、STM 探針の走 査スピードと同期させることで、STM 像と ΔI/ΔV 像が 同時に得られる。

この手法は簡便なためしばしば使われるが大変注意が必要である。CITSでは、 V_s で $z_P = z_{AP}$ となるようにzを決めdI/dV(V)曲線を測定したが、図 32(c)の場合は常にフィードバックがかかっているため、 $z_P \neq z_{AP}$ となる。

$$dI/dV \propto (\rho_s^{min}(V_s)\rho_t^{min}(E_F) + \rho_s^{maj}(V_s)\rho_t^{maj}(E_F)) \times \exp(-2\kappa(V_s)z(V_s))$$

となり、探針試料間距離を決定する電圧 (V_s) と分光測定 中の電圧 ($V = V_s$) は、独立に制御できない。つまり、電 圧を変えると z が変化してしまう。

そのため、場合によって次のようなことが起こる。探針 と試料のスピンが平行である場合、 $\rho_s^{min}\rho_t^{min} + \rho_s^{maj}\rho_t^{maj}$ は大きくなる。その際、トンネル電流は流れやすくなり フィードバックがかかっている状態では z_P は大きくな る。しかし、 z_P が大きくなると、 $\exp(-2\kappa z_P(V))$ は小さ くなる。逆に、反平行の場合、 $\rho_s^{min}\rho_t^{maj} + \rho_s^{maj}\rho_t^{min}$ は 小さくなり、 $\exp(-2\kappa z_{AP}(V))$ は大きくなる。 $dI/dV \propto \rho_s\rho_t \exp(-2\kappa z)$ であるため、平行と反平行でdI/dVはほ とんど同じになることがある [24] (図 33 参照)。ロックイ ンアンプを使用することで、S/N はよくなるが、dI/dV分 光像中のコントラストが何を意味するのか、よく考えなけ れば試料のスピン情報を見逃しかねない。

C. 定量測定:定距離モード

dI/dV 曲線より試料の多数と少数スピン状態密度 およびスピン偏極度を求めることができる。1 次元の WBC 近似の範囲内ではあるが、V > 0の dI/dVは、 $\rho_s(V)\rho_t(E_F)\exp(-z\sqrt{\Phi - eV/2})$ に比例する。

今、図 32(a) に示すように $\vec{P}_{s} \geq \vec{P}_{t}$ が平行・反平行な場 合のdI/dV曲線が得られたとする。前述のように、非対称 をとることで $A_{dI/dV} = (dI/dV_{P} - dI/dV_{AP})/(dI/dV_{P} + dI/dV_{AP}) = \vec{P}_{s} \cdot \vec{P}_{t}$ が得られる。しかし、その際に注意し ておかなくてはならない点がある。それは試料探針間距離 z も、図 31 のように $z = h + \Delta h \vec{P}_{s} \cdot \vec{P}_{t}$ なのである。その ため、定量的な測定を行うためには、図 32(c) に示したよ うなフィードバックをかけたままの状態での分光測定の結 果は使えない。定量解析を行うためには、 $z_{P} = z_{AP}$ とな る電圧 $V = V_{s}$ と、分光測定を行う V とを独立に制御で きる測定手法が必要である。

 $z_P = z_{AP}$ を実現するには、 $\vec{P_s} = 0$ となる電圧 V_s を見つける。多くの磁性試料表面では、スピン偏極電子状態密度はフェルミ準位近傍 ±1V に存在するため、±2V 以上を V_s としてやればよい。

図 33 を用いて、しばしば起こりうる事例を示す。まず、 dI/dV 曲線を測定する前に、ある試料電圧 (V_s) で試料探



FIG. 32: スピン偏極 STM:分光モード。(a) CITS モード。 $V = V_s$ で $z_P = z_{AP}$ となるように z を固定してから分光曲線を測定す る。(b) CITS モード。(a) と同様に分光曲線を測定するがロック インアンプを使用して $\Delta I/\Delta V$ 信号を得る。(c) 距離 z 変動モー ド。常にフィードバックがかかっているため、z が電圧により変 化する。S/N はよくなり分光像を比較的容易に得られるが、正確 な試料のスピン偏極度ベクトル分布が得られない危険性が高い。

針間距離 (z) を決め固定しなくてはならない。図 33(a)(黒 矢印) のように $|\vec{P}_s(V_s)| = 0$ となる電圧 V_s を選んだ場 合、探針試料間距離 (z) は平行・反平行の場合で等しく $z = h + \Delta h \vec{P}_s \cdot \vec{P}_t = h$ となる。その場合の $T = \exp(-2\kappa z)$ は平行・反平行の場合で等しくなる ($T_A = T_B$)。この Tを用いて得た dI/dV 曲線は図に示すように、正電圧側で 平行・反平行で差を示す。つまり、磁気コントラストは正 バイアス側に現れる。

しかし、選んだ V_s で $|\vec{P}_s(V_s)| \neq 0$ である場合 (図 33(b) 黒矢印)、試料探針間距離 (z) は、平行の場合 $z_P = h + \Delta h$ 、 反平行の場合 $z_{AP} = h - \Delta h$ となる。実際、このようなこと が多い。そのため、T は平行・反平行で変わる ($T_C \neq T_D$)。 結果として平行・反平行の場合の dI/dV 曲線の強度の関 係は図 33(a) の場合とは全く変わってしまう。負電圧側で、 磁気コントラストが生じ、さらにコントラストは反転して しまうのである。

そのため、定量解析を行う際は



FIG. 33: 試料探針間距離を決定する $V_s \circ dI/dV$ 曲線および磁気コントラストへの影響。(a) スピン偏極の無い ($|\vec{P}_s(V_s)| = 0$) 電圧を選んだ場合と (b) スピン偏極の有る ($|\vec{P}_s(V_s)| \neq 0$) 試料 電圧を選んだ場合。

- 1. $V_s \ge |\vec{P_s}| = 0$ である電圧とするか、
- 2. それが分からない場合は dI/dV 曲線を測定し、これ から $T = \exp(-2\kappa z)$ を取り除く必要がある。

(2) の場合、Tはフィッティングにより求まる。dI/dV曲線を+3Vから-3Vの範囲で測定することが望ましい。表面状態の電子状態ピークはたいてい 2V以上ではTに埋もれてしまうため、2V以上のdI/dVに対してTをフィッティングさせる。

$$T = a_s \exp(-b\sqrt{\Phi - eV/2}) + a_t \exp(-b\sqrt{\Phi + eV/2})$$

を用いる。Φは探針と試料の仕事関数である。通常、3.5-4.5 eV であるので、これを入力する。式の第 1 項目が正バイ アス側の dI/dV、第 2 項目が負バイアス側の dI/dV を示 す。最小二乗法フィッティングにより $a_s, a_t, b(\sim 1.02z)$ を 求める [69]。仕事関数値をふって最適なフィッティング値 を求めることが望ましい。求めた T で dI/dV を割る(規 格化)[23, 24]。この規格化 dI/dV の非対称性をとれば、 $A_{(dI/dV)/T} = \vec{P_s} \cdot \vec{P_t}$ となる。V > 0 では、 $\vec{P_s}(V) \cdot \vec{P_t}(E_F)$ である。
$$\begin{split} (dI/dV)/T_{P} &= \rho_{s}^{min}\rho_{t}^{min} + \rho_{s}^{maj}\rho_{t}^{maj} \\ (dI/dV)/T_{AP} &= \rho_{s}^{min}\rho_{t}^{maj} + \rho_{s}^{maj}\rho_{t}^{min} \\ A_{(dI/dV)/T} &= \frac{(dI/dV)/T_{P} - (dI/dV)/T_{AP}}{(dI/dV)/T_{P} + (dI/dV)/T_{AP}} \\ &= \frac{\rho_{s}^{maj} - \rho_{s}^{min}}{\rho_{s}^{maj} + \rho_{s}^{min}} \frac{\rho_{t}^{maj} - \rho_{t}^{min}}{\rho_{t}^{maj} + \rho_{t}^{min}} \\ &= P_{sample}P_{tip}, \end{split}$$

この規格化 (dI/dV)/T 曲線を用いることで、 $z = h + \Delta h \vec{P}_{sample} \vec{P}_{tip}$ により、 $z_P \neq z_{AP}$ であっても試料のスピン偏極度を得ることができる。

試料の多数と少数の電子スピン電子状態密度分布を得る には、上記の式を組み替えてやればよい。つまり、

$$\rho_s^{maj}(V) = \frac{1}{c} \left(1 - \frac{A_{(dI/dV)/T}}{P_t}\right) \left((dI/dV)/T\right)_{ave}\right)$$

$$\rho_s^{min}(V) = \frac{1}{c} \left(1 + \frac{A_{(dI/dV)/T}}{P_t}\right) \left((dI/dV)/T\right)_{ave}\right)$$

となる。 $c = \rho_t^{maj}(E_F) + \rho_t^{min}(E_F)$ 。 $(dI/dV)/T)_{ave}$ は平行・反平行な場合で得た(dI/dV)/T曲線の平均である。

Acknowledgments

本装置開発は多くの方々の援助なしに達成することがで きなかった。心より御礼申し上げる。特に Prof.Dr. Wulf Wulfhekel には、装置開発の当初から現在に至るまで親身 にアドバイスいただいた。Dr. Tobias Schuh と宮町俊夫 博士には、低温の熱リーク問題やピエゾ素子の温度による 駆動特性変化の問題に対し熱心に取り組んでいただいた。 溝口正教授、入澤寿和博士には探針作成技術の発展に協力 いただいた。山岸祐平君、福田秀人君、坂口雄基君、N.K. M. Nazriq 君、一瀬奈美さんには、STM 装置開発技術の発 展に協力いただいた。装置作成のための部品購入は外部資 金なくては不可能であった:科学研究費補助金(22810005、 23681018)、科学技術振興調整費-若手研究者の自立的研究 環境整備促進費、島津科学技術振興財団、双葉電子記念財 団、中島記念国際交流財団、中部電気利用基礎研究振興財 団、小澤・吉川記念エレクトロニクス研究助成基金、野口 遵研究助成金、池谷科学技術振興財団、新化学発展協会、 畠山文化財団より助成いただいたことを心より感謝する。

- R. Wiesendanger, Reviews of Modern Physics, 81 (2009), 1495.
- [2] T.K. Yamada, Handbool of Magnetic Imaging (in Japanese), Kyoritsu Shuppan (2010), 15.
- [3] R. Wiesendanger, H.-J. Güntherodt, G. Güntherodt, R.J. Gambino and R. Ruf, Phys. Rev. Lett. 65 (1990), 247.
- [4] R. Wiesendanger, M. Bode, and M. Getzlaff, Appl. Phys.

Lett. 75 (1999), 124.

- [5] S. Heinze, M. Bode, A. Kubetzka, O. Pietzsch, X. Nie, S. Blügel, and R. Wiesendanger, Science 288 (2000), 1805.
- [6] M. Kleiber, M. Bode, R. Ravlić, and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. 85 (2000), 4606.
- [7] O. Pietzsch, A. Kubetzka, M. Bode, and R. Wiesendanger, Science 292 (2001), 2053.
- [8] S. Krause, L. Berbil-Bautista, G. Herzog, M. Bode, and R. Wiesendanger, Science **317** (2007), 1537.
- [9] M. Bode, M. Heide, K. von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blügel, R. Wiesendanger, Nature 447 (2007), 190.
- [10] F. Meier, L. Zhou, J. Wiebe, and R. Wiesendanger, Science **320** (2008), 82.
- [11] W. Wulfhekel, H.F. Ding, W. Lutzke, G. Steierl, M. Vazquez, P. Marin, A. Hernando, and J. Kirschner, Appl. Phys. A 72, (2001), 463.
- [12] A. Yamasaki, W. Wulfhekel, R. Hertel, S. Suga, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 91 (2003), 127201.
- [13] U. Schlickum, W. Wulfhekel, and J. Kirschner, Appl. Phys. Lett. 83 (2003), 2016.
- [14] U. Schlickum, N. Janke-Gilman, W. Wulfhekel, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 92 (2004), 107203.
- [15] C.L. Gao, U. Schlickum, W. Wulfhekel and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 98 (2007), 107203.
- [16] C.L. Gao, W. Wulfhekel, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. **101** (2008), 267205.
- [17] H. Yang, A.R. Smith, M. Prikhodko, W.R.L. Lambrecht, Phys. Rev. Lett. 89 (2002), 226101.
- [18] S.N. Okuno, T. Kishi, and K. Tanaka, Phys. Rev. Lett. 88 (2002), 066803.
- [19] T. Kawagoe, Y. Iguchi, A. Yamasaki, Y. Suzuki, K. Koike, and S. Suga, Phys. Rev. B **71** (2005), 014427.
- [20] Y. Yayon, V. W. Brar, L. Senapati, S.C. Erwin, and M.F. Crommie, Phys. Rev. Lett. 99 (2007), 067202.
- [21] J. Prokop, A. Kukunin, and H.J. Elmers, Phys. Rev. B 73 (2006), 014428.
- [22] T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, T. Mizoguchi, and H. van Kempen, Appl. Phys. Lett. 82 (2003), 1437.
- [23] T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, G.M.M. Heijnen, T. Mizoguchi, and H. van Kempen, Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003), 4688.
- [24] T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, G.M.M. Heijnen, T. Mizoguchi, and H. van Kempen, Phys. Rev. Lett. 90 (2003), 056803.
- [25] T. Matsuda, A. Tonomura, T.K. Yamada, D. Okuyama, N. Mizuno, A.L. Vázquez de Parga, H. van Kempen, and T. Mizoguchi, IEEE Trans. Magn. 41 (2005), 3727.
- [26] T.K. Yamada, R. Robles, E. Martinez, M. M. J. Bischoff, A. Vega, A.L. Vázquez de Parga, T. Mizoguchi, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 72 (2005), 014410.
- [27] T.K. Yamada, E. Martinez, A. Vega, R. Robles, D. Stoeffler, A.L. Vázquez de Parga, T. Mizoguchi, and H. van Kempen, Nanotechnology 18 (2007), 235702.
- [28] S. Schmaus, A. Bagrets, Y. Nahas, T.K. Yamada, A. Bork, F. Evers, and W. Wulfhekel, Nature Nanotechnology, 6 (2011), 185.
- [29] T. Miyamachi, M. Gruber, V. Davesne, M. Bowen, S. Boukari, F. Scheurer, G. Rogez, T.K. Yamada, P. Phresser, E. Beaurepaire, and W. Wulfhekel, Nature Communications, **3** (2012), 938.
- [30] A. Bagrets, S. Schmaus, A. Jaafar, D. Kramczynski, T.K. Yamada, M. Alouani, W. Wulfhekel, and F. Evers, Nano Letters, **12** (2012), 5131.

- [31] L. Gerhard, T.K. Yamada, T. Balashov, A.F. Takacs, M. Daena, S. Ostanin, A. Ernst, I. Mertig, and W. Wulfhekel, Nature Nanotechnology, 5 (2010), 792.
- [32] Y. Yamagishi, S. Nakashima, K. Oiso and T. K. Yamada, Nanotechnology 24 (2013), 395704.
- [33] S. Nakashima, Y. Yamagishi, K. Oiso, and T. K. Yamada, Jap. J. Appl. Phys. **52** (2013), 110115.
- [34] K. von Bergmann, M. Bode, A. Kubetzka, O. Pietzsch, and R. Wiesendanger, Microscopy Research and Technique, 66 (2005), 61.
- [35] W. Wulfhekel, U. Schlickum, and J. Kirschner, Microscopy Research and Technique, 66 (2005), 105.
- [36] T.K. Yamada, A.L. Vázquez de Parga, M.M.J. Bischoff, T. Mizoguchi, and H. van Kempen, Microscopy Research and Technique, 66 (2005), 93.
- [37] A.R. Smith, R. Yang, H. Yang, A. Dick, J. Neugebauer, and W.R.L. Lambrecht, Microscopy Research and Technique, 66 (2005), 72.
- [38] S. Murphy, S.F. Ceballos, G. Mariotto, N. Berdunov, K. Jordan, I.V. Shvets, and Y.M. Mukovskii, Microscopy Research and Technique, 66 (2005), 85.
- [39] A. J. Heinrich, J. A. Gupta, C. P. Lutz, and D. M. Eigler, Science, **306** (2004), 466.
- [40] C.F. Hirjibehedin, C.Y. Lin, A.F. Otte, M. Ternes, C.P. Lutz, B.A. Jones, and A.J. Heinrich, Science, **317** (2007), 1199.
- [41] T. Balashov, A.F. Takacs, W. Wulfhekel, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 97 (2006), 187201.
- [42] C. L. Gao, A. Ernst, A. Winkelmann, J. Henk, W. Wulfhekel, P. Bruno, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 100 (2008), 237203.
- [43] T. Balashov, T. Schuh, A.F. Takacs, A. Ernst, S. Ostanin, J. Henk, I. Mertig, P. Bruno, T. Miyamachi, S. Suga, and W. Wulfhekel, Phys. Rev. Lett. **102** (2009), 257203.
- [44] M. Bode, Rep. Prog. Phys. 66 (2003), 523.
- [45] T. Irisawa, T.K. Yamada, and T. Mizoguchi, New Journal of Physics, 11 (2009), 113031.
- [46] Private communication with Dr. Nagai.
- [47] T.K. Yamada and A. L. Vazquez de Parga, (2014), inpreparation.
- [48] M.M.J. Bischoff, T.K. Yamada, C.M. Fang, R.A. de Groot, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 68 (2003), 045422.
- [49] A.F. Otte, M. Ternes, K. Von Bergmann, S. Loth, H. Brune, C.P. Lutz, C.F. Hirjibehedin, and A.J. Heinrich, Nature Physics, 4 (2008), 847.
- [50] 溝口正,応用物理工学選書5:磁気と磁性I,培風館,(1995).
- [51] O. Pietzsch, A. Kubetzka, M. Bode, and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett., 84 (2000), 5212.
- [52] H.F. Ding, W. Wulfhekel, J. Henk, P. Bruno, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), 116603.
- [53] M. Kleiber, M. Bode, R. Ravlic and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. 85 (2000), 4606.
- [54] M.M.J. Bischoff, T.K. Yamada, C.M. Fang, R.A. de Groot, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 68 (2003), 045422.
- [55] M.M.J. Bischoff, T.Yamada, A.J. Quinn, R.G.P. van der Kraan, and H. van Kempen, Phys. Rev. Lett. 87 (2001),246102.
- [56] M.M.J. Bischoff, T.K.Yamada, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 67 (2003), 165403.
- [57] S.F. Alvarado and P. Renaud, Phys. Rev. Lett. 68 (1992), 1387.

- [58] A.L. Vazquuz de Parga and S.F. Alvarado, Phys. Rev. Lett. 72 (1994), 3726.
- [59] A.L. Vazquuz de Parga and S.F. Alvarado, Europhys. Lett. **36** (1996), 577.
- [60] D.T. Pierce, A. Davies, J.A. Stroscio and R.J. Celotta, Appl. Phys. A 66 (1998), S403.
- [61] M. W. J. Prins, M. C. M. M. van der Wielen, R. Jansen, D. L. Abraham and H. van Kempen, Appl. Phys. Lett. 64 (1994), 1207.
- [62] M.W.J. Prins, R. Jansen, R.H.M. Groeneveld, A.P. van Gelder, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 53 (1996), 8090.
- [63] M.W.J. Prins, R. Jansen, R.H.M. Groeneveld, A.P. van Gelder, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 53 (1996), 8105.
- [64] R. Jansen, M.W.J. Prins, and H. van Kempen, Phys. Rev. B 57 (1998), 4033.
- [65] R. Jansen, R. Schad, and H. van Kempen,

J.Magn.Magn.Mater. 198-199 (1999), 668.

- [66] V.P. LaBella, D.W. Bullock, Z. Ding, C. Emery, A. Venkatesan, W.F. Oliver, G.J. Salamo, P.M. Thibado and M. Mortazavi, Science **292** (2001), 1518.
- [67] Y.J. Song, A.F. Otte, Y. Kuk, Y. Hu, D.B. Torrance, P.N. First, W.A. de Heer, H. Min, S. Adam, M.D. Stiles, A.H. MacDonald, and J.A. Stroscio, Nature, 467 (2010), 185.
- [68] V.A. Ukraintsev, Phys. Rev. B 53 (1996), 11176.
- [69] T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, T. Mizoguchi, H. van Kempen, Surf. Sci. **516** (2002), 179.
- [70] G. de Raad, P. Koenraad, and J. H. Wolter, J. Vac. Sci. Technol. B 17 (1999), 1946.
- [71] A.R. Miedema, P.F. de Châtel, and F.R. de Boer, Physica 100B (1980), 1.
- [72] 低温技術 物理工学実験, 小林俊一, 大塚洋一, 東京大学出版 会 (1987).

■ STM・AFMによる磁区観察

2. AFM磁気イメージング技術(MFM): 齊藤 準 秋田大学 工学資源学研究科

(1) はじめに

磁気力顕微鏡 (MFM; Magnetic Force Microscope) は原子間顕微鏡 (AFM; Atomic Force Microscope) の中の非接触原子間顕微鏡 (Non-contact AFM; NF-AFM) の一形態であり、探針に強磁性体を用いて磁気力を検出する走査型プローブ顕微鏡 (Scanning Probe Microscope)である。測定試料は、非接触原子間顕微鏡で観察できる表面凹凸を有する試料の中で、磁場を発生するものであり、磁性体材料や磁気デバイスが代表的なものである。磁気力顕微鏡は、試料から発生する磁場により強磁性体探針に働く磁気力を検出する。磁気力顕微鏡の走査型トンネル顕微鏡 (STM; Scanning Tunnel Microscope) の磁気イメージング技術である、スピン偏極STMの大きな違いは、スピン偏極STMは近距離の原子間の磁気的相互作用を利用するのに対して、MFMは遠距離力である磁気力を利用する点である。したがって、MFMは、試料の表面が非磁性体で覆われていても観察できる特徴を有する。

磁気力顕微鏡を歴史的に見ると、当初、測定雰囲気として装置構成が簡便な、大気中で静磁場 観察がなされた。測定方式はカンチレバーをその共振周波数近傍の一定周波数で加振して、試料 からの磁場によるカンチレバー振動の振幅や位相の変化を検出する方式が用いられた。大気中に おける、これらの方式では、空気粘性によりカンチレバーの共振性能因子(Q)が低かったので、測 定感度を向上させるために、空気粘性が小さい真空雰囲気でQを高めた測定が、次になされるよう になった。しかしながら、一方で、Qの増加によりカンチレバーの過渡振動の時間が増加し、探針 走査速度を遅くしなければならなくなった。このため、非接触原子間顕微鏡の技術として開発さ れた、共振周波数で励振する周波数検出方式が、磁気力顕微鏡にも適用されるようになった。

このように必要とする計測感度、空間分解能により、様々な方式の磁気力顕微鏡が、現在、多 くの企業により、製品化されている。以上を概観すると、従来の磁気力顕微鏡開発は、高感度化 のためのQの増加に伴い顕著となる、カンチレバーの過渡振動を抑止する方向で進められてきた。 近年、この方向性とは逆に、カンチレバーの過渡振動等の動的現象を利用する計測手法が、計測 感度ならびに空間分解能の向上の観点から有効であることが、筆者の研究グループにより発表さ れ、高分解能・高機能な磁気力顕微鏡の研究開発が進められている。本稿では、上記の歴史的経 緯を踏まえて、磁気力顕微鏡技術を概観する。

(2) 原理

最初に、磁気力顕微鏡(MFM)の基礎となる、非接触原子間顕微鏡(NF-AFM)の原理のポイントを述べる。より詳しくは、例えば、筆者が分担執筆した、磁気イメージングハンドブック(共立 出版、2010年)⁽¹⁾を参照されたい。

NF-AFMは、探針と試料間に働く力を利用して、計測を行う。探針が試料面に近づくと、探針試料間に力が働く。この力は試料からの距離により減少するので、探針を試料表面上で振動させると、探針が受ける力は、振動している探針の試料表面からの距離に依存して変化する。この効果はカンチレバーに対してバネの復元力を変化させるように働き、カンチレバーのバネ定数を見かけ上、変化させる。このバネ定数の実効的な変化は、カンチレバーの共振周波数を変化させる。バネ定数の実効的な変化なな、カンチレバーの振動方向をz方向にとった場合、次式で与えられる。

$$\Delta k = \frac{\partial F_z}{\partial z} \quad (1)$$

ここで、 F_z はカンチレバーの探針部分に働く力のz成分であり、 $\frac{\partial F_z}{\partial z}$ は力勾配である。

カンチレバーの共振周波数の変化 Δf は、 Δk がカンチレバーのバネ定数 k_0 より十分小さい場合 には、 Δk に比例すると見なせる。($\Delta f \propto \Delta k$) カンチレバーの共振周波数の変化 Δf は、カン チレバーを共振周波数近傍の一定周波数で加振した場合、カンチレバーの振動の振幅および位相 の変化を引き起こす。振幅の変化量および位相の変化量が共振周波数の変化 Δf にほぼ比例する範 囲で、振幅および位相を計測することで、力勾配の計測が可能になる。

探針と試料間に働く力は、大別して近距離力と遠距離力に分類できる。遠距離力にはファンデ ルワールス力等の表面に起因する力が、遠距離力には電気力や磁気力がある。探針を試料表面に 近づけた、近距離力領域で、近距離力によるカンチレバーの振動挙動の変化を一定に保つことで、 探針試料間距離を一定になるように制御しながら、探針を走査すると、表面凹凸像の計測ができ る。

次に、磁気力顕微鏡(MFM)の原理のポイントを述べる。MFMで使用する磁性体探針においても、 磁性体探針を試料表面に近づけ、近距離力が主になる近距離力領域で、カンチレバーの振動挙動 の変化を一定に保つことで、探針試料間距離を一定になるように制御しながら、探針を走査する と表面凹凸像の計測ができる。この測定モードはタッピングモードと呼ばれることがある。

磁性体探針を試料表面から遠ざけて、磁気力が主になる遠距離力領域で、探針試料間距離を一 定に保った状態で、探針を走査して、カンチレバーの振動挙動の変化を計測すると、磁気力勾配 の計測ができる。この測定モードはトレースモードと呼ばれることがある。

磁性体探針に働く力 F_z は、探針の磁気特性や形状等により変化する。 F_z は、磁性体探針の磁気 モーメントが試料からの磁場と相互作用することで発生する。

磁気モーメントの両端の磁極が磁場から受ける力の和が、探針に働く力となる。試料表面から 遠い磁極に働く力が、試料表面に近い磁極に働く力に対して無視できない場合、探針は双磁極型 探針として振る舞う。

双磁極型探針では、磁性体探針に働く磁気力 F_z は、次式で与えられる。

$$F_{z} = m_{x}\frac{\partial H_{z}}{\partial x} + m_{y}\frac{\partial H_{z}}{\partial y} + m_{z}\frac{\partial H_{z}}{\partial z} = m_{x}\frac{\partial H_{x}}{\partial z} + m_{y}\frac{\partial H_{y}}{\partial z} + m_{z}\frac{\partial H_{z}}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z}\boldsymbol{m}\boldsymbol{\cdot}\boldsymbol{H} \quad (2)$$

ここで、m は磁性体探針の磁気モーメント、H は磁気モーメントの位置での磁場である。 磁気力勾配 $\frac{\partial F_z}{\partial z}$ は、次式で与えられる。

 $\frac{\partial F_z}{\partial z} = m_x \frac{\partial^2 H_x}{\partial z^2} + m_y \frac{\partial^2 H_y}{\partial z^2} + m_z \frac{\partial^2 H_z}{\partial z^2} = \frac{\partial^2}{\partial z^2} \boldsymbol{m} \cdot \boldsymbol{H} \quad (3)$

磁性体探針において、試料表面から遠い磁極に働く力が、試料表面に近い磁極に働く力に対し て無視できる場合、探針は近似的に単磁極型探針として次式のように、振る舞う。単磁極型探針 は、探針の磁気モーメントが探針の長手方向を向いており、探針試料間距離が、磁性膜厚より小 さい場合等が相当する。

$$F_{z} = m_{x} \frac{\partial H_{z}}{\partial x} + m_{y} \frac{\partial H_{z}}{\partial y} + q_{m}H_{z} = m_{x} \frac{\partial H_{x}}{\partial z} + m_{y} \frac{\partial H_{y}}{\partial z} + q_{m}H_{z} \quad (4)$$
$$\frac{\partial F_{z}}{\partial z} = m_{x} \frac{\partial^{2} H_{x}}{\partial z^{2}} + m_{y} \frac{\partial^{2} H_{y}}{\partial z^{2}} + q_{m} \frac{\partial H_{z}}{\partial z} \quad (5)$$
ここで、*q_m*は磁性体探針先端にある磁極である。

磁性体探針の磁気モーメント**m** が探針の長手方向を向いている場合には、(4)、(5)式は次式となる。

$$F_z \cong q_m H_z$$
 (6), $\frac{\partial F_z}{\partial z} \cong q_m \frac{\partial H_z}{\partial z}$ (7)

磁性体試料から発生する磁場勾配は、試料の磁極分布を構成する点磁極が、観測点に発生させ る磁場勾配の重ね合わせで表現できる。個々の点磁極が観測点に発生する磁場勾配は、伝達関数 (グリーン関数)で記述できる。この伝達関数は、磁気における磁極間のクーロン相互作用に基 づき導出できる。伝達関数の性質を利用することで、観察で得られる磁場勾配像に対して、探針 試料間距離を変化させた磁場勾配像や、積分形となる磁場勾配像を、画像データの計算処理によ る信号変換により得ることができる。特に、探針試料間距離をゼロにした磁場像は、試料表面で の磁極像に対応するので、磁気力顕微鏡像の解釈に有効となる。伝達関数の性質やその磁気力顕 微鏡像解釈への応用の詳細は、磁気イメージングハンドブック(共立出版、2010年)⁽¹⁾を参照さ れたい。

磁性体探針がハード磁気特性を有する、ハード磁性探針の場合には、磁性体探針の磁気モーメ ントmが試料からの磁場で方向を変えないので、探針は上式に従い、試料からの磁場勾配を検出 する。探針の磁気モーメントの方向を着磁により種々変化させることで、磁気モーメントに平行 な方向の磁場の勾配を計測できる。像信号の信頼性を高める上で、磁性体探針がハード磁気特性 を有することは重要である。探針には、試料からの磁場方向に依存し、引力あるいは斥力が働く。

磁性体探針がソフト磁気特性を有する、ソフト磁性探針の場合には、試料から発生する磁場に より、磁性体探針の磁気モーメントmの方向が変化するので、観察場所に依存し計測磁場方向が 変化し、像信号の解釈は困難となる。磁気モーメントmは、磁場方向の成分をもつので、探針全 体として常に引力を検出することになる。ソフト磁性探針の磁気モーメントの方向は、観測場所 の磁場強度により種々変化するので、定量的な像解釈は困難な場合が多い。

(3) 汎用測定(直流磁場測定を主として)

磁気力顕微鏡のこれまでの主要な計測対象は、直流磁場勾配であり、強磁性体の静的な磁区構造の観察に主に使用されてきた。観察には、試料からの漏洩磁場で探針の磁気モーメントの方向が変化しない磁性探針を用いることが望ましい。観察対象として、試料からの漏洩磁場の小さいソフト磁性薄膜の場合を除いた多くの場合、観察には、ハード磁気特性を有するハード磁性探針が用いられている。ハード磁性探針は、非接触原子間顕微鏡用のSi探針に種々のハード磁性薄膜を成膜することで作製され、市販のものや自作のものが観察に使用されている。ハード磁性合金として、Co、CoCr系合金、CoPt系規則合金、FePt系規則合金等が用いられている。ここで、これら合金の成膜には、磁性薄膜の付着性を高めるためにスパッタリング法が用いられることが多い。単金属では蒸着法を利用して、Si探針の構成面の一面のみの成膜等、探針の空間分解能を向上させるために、指向性を高めた成膜が用いられることがある。

磁気力顕微鏡の測定方式として、カンチレバーをその共振周波数近傍の一定周波数で加振して、 試料からの磁場によるカンチレバー振動の振幅や位相の変化を検出する方式が一般的に用いられ ている。表面凹凸が大きな試料に対しては、振幅検出法を用いた場合、測定雰囲気が大気中のと きに探針と試料の間の空気の存在により、探針振動の振幅が減少する問題が起こることがあり、 磁気力に関して誤った結果を与えることがある。この場合には、表面凹凸の影響を受けにくい、 位相検出法が主に用いられている。

近年の高分解能化の要求を背景として、カンチレバーの共振性能因子(Q)を増加させることで、

カ測定感度を向上させた真空雰囲気型の磁気力顕微鏡が用いられるようになってきている。ただし、真空雰囲気では、磁気力の検出感度は向上するものの、カンチレバーの過渡振動の時間が増加するので、Qが大きくなりすぎると、探針走査速度を大気中より遅くしなければならない問題がある。そこでは、電気的に位相を調整して、Qを適切な値に制御するQコントロールと呼ばれる非接触原子間力顕微鏡で開発された技術が用いられることがある。その詳細は磁気イメージングハンドブック(共立出版、2010年)⁽¹⁾を参照されたい。

Qが大きい場合でも計測が可能な技術として、非接触原子間顕微鏡で開発された、共振周波数で 励振する周波数検出方式がある。この技術は、共振周波数の変化を、制御系を用いて正のフィー ドバックにより追従するものであり、制御系の追従速度をカンチレバーの過渡振動時間より速く することで、過渡振動の影響を回避している。Qが大きい場合には、探針が試料面と接触した場合、 振動状態の乱れが大きいので共振周波数の追従が困難になる。このため、探針を試料面に接触さ せないことが重要である。したがって、表面凹凸が大きな試料では、空間分解能の高い表面凹凸 像の取得が容易ではないことが問題点としてあり、Qの増加による検出感度の向上と表面凹凸像の 観察しやすさはトレードオフの関係となる。

(4) MFM・測定技術の発展

ここでは、汎用の磁気力顕微鏡の課題を踏まえた、課題解決のための測定技術の発展について 述べる。第1節で述べたように、これまで磁気力顕微鏡の高感度化や高分解能化は、カンチレバ ーの共振性能因子(Q)を増加させ、その際に顕著となるカンチレバーの過渡振動を抑止する方向で 進められてきた。一方で、この方向性とは逆に、カンチレバーの過渡振動等の動的現象を利用す る計測手法が、計測感度ならびに空間分解能の向上の観点から有効であることが、明らかになっ てきた。本節では、カンチレバーにその共振周波数と異なる、探針の励振力として直接には寄与 しない非共振磁気力を利用した交番磁気力顕微鏡 (A-MFM; Alternating Magnetic Force Microscope)と、探針走査に伴い発生する過渡振動を利用した垂直・面内磁場同時検出・磁気力 顕微鏡を紹介する。

(4-1) 非共振磁気力を利用した交番磁気力顕微鏡

表1 に汎用の磁気力顕微鏡の特徴と、その課題解決のために考案した、交番磁気力顕微鏡の特 徴を示す。汎用MFMの測定対象は主に直流磁場であり、遠距離力である磁場を計測するには、探針 試料間距離を、近距離力である表面に起因する力より、磁気力が大きくなる範囲まで増加させる 必要があるので、試料表面近傍での磁場計測は困難である。

汎用MFMでは、磁気力が主になる探針試料間距離において、直流磁場の勾配を、探針の共振周波数の変化や、共振周波数変化に伴う、探針振動の振幅や位相の変化を計測し、画像化する。共振 周波数や、振動の振幅や位相を変化させる力は、遠距離力である磁気力と近距離力である表面に 起因する引力との総和になるので、磁気力のゼロ検出ならびに極性検出(引力、斥力のどちらで あるのか)が直接にはできず、磁気力単独の検出は困難である。また、観測される磁場の方向は、 探針の磁気モーメントの方向に依存するので、異なる方向の磁場を計測するのには、都度、着磁 により探針の磁気モーメントの方向を変えなければならず、磁場のベクトル計測を、一度の探針 走査で行うことは困難である。汎用MFMを用いた交流磁場の計測はあまりなされておらず一般的で はない。その理由は、汎用MFMで計測できる交流磁場の周波数が、カンチレバーの共振周波数近傍 の周波数に限定されるからである。カンチレバーの共振周波数と異なる周波数の磁場は、探針を 励振できないので、汎用MFMではその検出は困難である。

一方、交番磁気力顕微鏡(A-MFM)の測定対象は直流磁場および交流磁場である。A-MFM では磁 気力のみの検出が可能であるので、試料表面近傍での磁場計測が可能になり、10 nm 以下の空間 分解能が大気雰囲気においても得られる。さらに、磁場の強度情報に加えて位相情報も取得でき るので、直流磁場に関してはベクトル磁場検出が、交流磁場に関してはストロボ磁場観察が可能 になる特長を有する。

次に A-MFM の計測原理を述べる。強制振動している探針にその共振周波数と異なる非共振の交 番力を加えると、探針振動に周波数変調が発生する⁽²⁾。探針をその共振周波数ω₀で励振した場合 には、探針振動の振幅は変化せず、探針の振動周波数のみが、加えられた交番力の周波数で時間 変化する。ここで A-MFM の磁性探針に、非共振の磁気力(角周波数ω_μ)を印加すると、その実効 的バネ定数は $\Delta k_m \cos(\omega_m t)$ で変化し、磁性探針の運動方程式は次式で与えられる⁽²⁾。

 $m\left(\frac{d^2 z(t)}{dt^2} + m\gamma \left(\frac{dz(t)}{dt} + \left(\frac{k_0 + \Delta k_m \cos(\omega_m t)}{\omega_m t}\right)z(t)\right) = F_0 \cos(\omega_0 t)$ (1)

実効的バネ定数が周期的時間する項が加わるところが、汎用 A-MFM との差異である。探針固有 のバネ定数が、磁気力による実効的バネ定数変化より大きな場合(k₀ >> Δk_m)、磁性探針の振動 は次式で与えられ、探針振動に狭帯域の周波数変調が発生する⁽²⁾。

 $z(t) = F_0 / (m\gamma\omega_0) \sin(\omega_0 t + \Delta k_m / (m\gamma\omega_0) \cos(\omega_m t))$

 $= F_0 / (m\gamma\omega_0) \left(\sin(\omega_0 t) + \Delta k_m / (m\gamma\omega_0) \left(\cos[(\omega_0 + \omega_m)t] + \cos[(\omega_0 - \omega_m)t] \right) \right)$ (2)

一般化した磁性探針の実効的バネ定数の変化は、磁性体探針が単磁極型の場合、以式で与えら れる。なお、磁性体探針は、空間分解能が高くなる探針試料間距離の小さな領域では、探針先端 の磁極の寄与が大きくなる単磁極型で近似できる場合が多い。

$$\begin{aligned} \Delta k_m(t) &= \Delta \left(\partial F_m(t) / \partial z \right) = \partial / \partial z \left(\left(q_{tip}^{dc} + q_{tip}^{ac} \cos(\omega_m t) \right) \left(H_z^{dc} + H_z^{ac} \cos(\omega_m t) \right) \right) \\ &= \left(q_{tip}^{dc} \left(\partial H_z^{dc} / \partial z \right) + q_{tip}^{ac} / 2 \left(\partial H_z^{ac} / \partial z \right) \right) \end{aligned} \tag{3}$$

 $+ \left(\frac{q_{tip}^{ac}}{\partial H_z^{dc}} / \frac{\partial z}{\partial z} \right) + \frac{q_{tip}^{ac}}{\partial H_z^{ac}} / \frac{\partial z}{\partial z} \right) \cos(\omega_m t) + \frac{q_{tip}^{ac}}{\partial t} / \frac{2}{\partial z} \cos(2\omega_m t)$ A-MFM では、1)交流磁場計測用にハード磁性探針を、2)直流磁場計測用にソフト磁性探針 を用いる。これらの場合に、(3)式は以下となる。

1) ハード磁性探針を用いた交流磁場計測

ハード磁性探針では探針磁極は以下の条件を満たす。 $q_{iip}^{dc} \gg 1$, $q_{iip}^{ac} = 0$ このとき(3)式の時間変化 項は、 $\Delta k_m(t) = q_{tip}^{dc} \left(\partial H_z^{ac} / \partial z \right) \cos(\omega_m t)$ (4)

となり、観察試料(ソフト磁性材料)から発生する交流磁場 $\left(\partial H_z^{ac}/\partial z\right)\cos(\omega_m t)$ の計測が可能に なる^{(2)~(5)}。ハード磁性探針の磁気特性が不十分な場合に $q_{tip}^{ac'} \neq 0$ となり、 $\Delta k_m(t)$ に $q_{tip}^{ac}/2(\partial H_z^{ac}/\partial z)\cos(2\omega_m t)$ が加わるので、ハード磁性探針の磁気特性が十分であるかどうかは、周 波数変調にcos(2*a*,,*t*)が現れないことをもって判断できる。

2) ソフト磁性探針を用いた直流磁場計測

ここではソフト磁性探針に外部から一様な交流磁場を印加して探針磁極を $q_{tip}^{ac}\cos(\omega_m t)$ で変 化させる。観察試料をこの交流磁場により磁化が変化しないハード磁性材料とすると、 $\left(\frac{\partial H_z^{ac}}{\partial z}\right) \ll 1$ により、(3)式の時間変化項は、

 $\Delta k_m(t) \cong q_{iip}^{ac} \left(\partial H_z^{dc} / \partial z \right) \cos(\omega_m t)$ (5) となり、ハード磁性材料から発生する直流磁場 $\left(\partial H_z^{dc} / \partial z \right)$ の計測が可能になる^{(6),(9)}。さらに、 A-MFMの汎用 MFM と異なる主な特徴として、汎用MΦMが磁気力強度に係わるスカラー信号のみを 扱うのに対して、A-MFM では、交番磁気力に係わるベクトル信号($R e^{i\theta} = X + i Y$)を扱うことが ある。この特徴により、A-MFMでは、3)交流磁場計測ではストロボ磁場計測^のが、4)直流磁場 計測ではベクトル磁場計測⁽⁸⁾が可能になる。

3)交流磁場のストロボ磁場計測

交流磁場を観察している磁性体試料において、交流電流 Iocos(omt)をコイルに印加して試料

磁化を励磁している場合、交流磁場により試料磁化が時間変化する。交流磁場が試料磁化の回転 磁化成分により発生している場合、回転磁化は交流電流と位相が同一の同相磁化成分 , *M*₀ cos(*a_nt*)と、位相が90°異なる直交磁化成分, *M*₀ sin(*a_nt*)をもつので、これらの磁化成分が発 生する交流磁場はお互いに直行する。したがって(3)式の時間変化項は次式で与えられる。

 $\begin{aligned} \Delta k_m(t) &= q_{tip}^{dc} \left(\partial H_z^{ac} (M_0 \cos(\omega_m t)) / \partial z + \partial H_z^{ac} (M_0 \sin(\omega_m t)) / \partial z \right) \\ &= q_{tip}^{dc} \cos(\omega_m t) \left(\partial H_z^{ac} (M_z) / \partial z \right) + q_{tip}^{dc} \sin(\omega_m t) \left(\partial H_z^{ac} (M_x) / \partial z \right) \end{aligned}$

(6)

ロックインアンプを用いてこれらの磁化成分から発生する交流磁場を抽出し、一定間隔で位相 を加えることで、試料磁化から発生する交流磁場のストロボ磁場計測が可能になる⁽⁷⁾。

4) 直流磁場のベクトル磁場計測

2) ではソフト磁性探針を、探針先端の磁極密度が変化する単磁極型探針として扱ったが、 ここでは近似を高め、ソフト磁性探針を、探針磁化が外部からの一様な交流磁場により回転する 双磁極型探針として定式化する。この場合、探針磁化は同方向の磁場の勾配を検出するので、実 効バネ定数の時間変化項は次式で与えられる。

 $\Delta k_m(t) = M_z^{ac}(tip)\cos(\omega_m t) \left(\frac{\partial^2 H_z^{dc}}{\partial z^2} + M_x^{ac}(tip)\sin(\omega_m t) \left(\frac{\partial^2 H_x^{dc}}{\partial z^2} \right) \right)$ $\approx q_{tip}^{ac}\cos(\omega_m t) \left(\frac{\partial H_z^{dc}}{\partial z} + M_x^{ac}(tip)\sin(\omega_m t) \left(\frac{\partial^2 H_x^{dc}}{\partial z^2} \right) \right)$ (7)

したがって、 $\Delta k_m(t)$ は外部からの交流磁場源に対して、位相が同一の同相磁化成分である $\left(\partial H_z^{dc}/\partial z\right)$ を含む第1項と、位相が90°異なる直交磁化成分である $\left(\partial^2 H_x^{dc}/\partial z^2\right)$ を含む第2項をもつ。 ロックインアンプを用いてこれらの成分を抽出することでベクトル磁場計測が可能になる。さら にこれら成分の位相を調節することで、試料面から任意の角度をもつ計測軸に対しての磁場計測 が可能になる⁽⁸⁾。

5) 計測システム

A-MFMの交流磁場および直流磁場に対する計測システムの一例を、各々、図1、図2に模式図 で示す。磁性探針に非共振の交番磁気力を発生させるのに、探針に非共振の交流磁場(角周波数 ω_m)を加えることは共通である。図1の交流磁場計測の場合、試料からの交流磁場が、ハード探 針先端の直流磁極に加わることで角周波数 ω_m の交番磁気力が発生する⁽²⁾。図2の直流磁場計測の 場合、外部からの交流磁場が、ソフト磁性探針の磁化を変化させ、試料からの直流磁場と相互作 用して角周波数 ω_m の交番磁気力が発生する⁽⁶⁾。ここで観察試料は交流磁場により磁化状態が変化 しないものを用いる、これらの探針に加わる交番磁気力が探針振動に周波数変調を生み出す。フ オトディテクタで検出した探針振動の周波数変調信号を、位相同期ループ回路(PLL)により周 波数復調し、ロックインアンプを用いて、参照信号を交流磁場源の励振電圧としてロックイン検 出する。($R e^{i\theta} = X + i Y$) 画像化信号は、周波数変調信号の振幅P、位相 θ 、参照信号に対する同 期成分 X、直交成分 Yから適宜選択する。

6) 観察例

図3に、A-MFMを用いて観察した、高磁場収束型磁気記録ヘッドの表面凹凸像および交流磁場像 を示す⁽¹⁰⁾。観察には自作したFePt-MgO系ハード磁性探針(FePt-MgO膜厚20 nm)を用いた。探針 試料間距離は2~3 nmである。磁気記録ヘッドに流す交流電流は40 mA、周波数は100 Hzとした。 観察雰囲気は大気中である。図(a)の表面凹凸像の中央の主磁極は、ギャップを隔ててトレーリン グシールと対向している。図(b)の振幅像は試料面に垂直方向の磁場の勾配の大きさを示しており、 図(d)のラインプロファイルから、信号はゼロ信号のギャップを隔てて主磁極とトレーリングシー ルで極大値をとり、主磁極では信号強度は最大となっていることがわかる。図(c)の位相像は、明 暗の2値画像となっており、図(d)のラインプロファイルから、明部と暗部の位相差は180°程度 であり、垂直磁場の極性がギャップを隔てて反転していることがわかる。図(d)の振幅信号から求 めたパワースペクトラムから空間分解能(S/N=1の磁気信号とノイズレベルが等しくなる波長の半 値で定義)を見積もると、8 nm程度の高い空間分解能が得られていることがわかる。高い空間分 解能の実現には、20 nm以下の膜厚で1200 kA/m(15 kOe)以上の保磁力を有するFePt系薄膜を成 膜した探針を用いることが有効であった。NF-MFMは磁気記録ヘッドの微視的発生磁場解析に有用 な手法と考えられる。

図4に、汎用型の磁気記録ヘッドにおける、A-MFMによる交流磁場のストロボ磁場計測画像を示すの。ここでは試料面に垂直方向の磁場を、試料面に垂直方向の磁化をもつFePtハード磁性探針を用いて大気雰囲気で計測している。交流磁場像に対して、磁気ヘッドの励磁電源との間の位相を調整することにより交流磁場の一周期の間の時間変化をストロボ的に観察することができる。 図に見るように、垂直磁場の発生源の分布の時間変化が明瞭に観察される。磁場の発生源である主磁極部分(ヘッド表面に現れる台形部分が断面方向に奥行きをもつ)では、励磁電流により磁化が1回転するのに伴う磁場変化が観察されている。すなわち、主磁極磁化が試料面に垂直のときには、主磁極面から磁場が発生し、主磁極の側面からは磁場が発生していないのに対して、主磁極磁化が試料面に平行のときには、逆に主磁極の側面から磁場が発生し、主磁極面からは磁場は発生していない。磁気記録ヘッドでは、磁気異方性付与による磁化の回転軸方向の制御が重要であり、この評価には、ストロボ磁場計測が有効と考えられる。

図5に、A-MFM を用いて大気雰囲気で観察した、高密度磁気記録媒体の(a)直流磁場像、(d)その ラインプロファイル、および(c)ラインプロファイルから求めた空間スペクトラムを示す^{□□}。同時 に図(b)には汎用の磁気力顕微鏡を用いて真空雰囲気で観察した直流磁場像、図(c)にはそれらの空 間スペクトラムを示す。観察には自作した Fe-Co ソフト磁性探針(Fe-Co 膜厚 20 nm)を用いた。 探針試料間距離は 2~3 nm である。外部より探針に印加した交流磁場の強度は 24 kA/m(300 Oe)、 周波数は 100 Hz とした。観察雰囲気は大気中である。図(c)で磁場信号とノイズ強度が等しくなる 波長の半値から空間分解能を見積もると、近接場磁気力顕微鏡では、6 nm 程度の高い空間分解能 が得られた。汎用の磁気力顕微鏡では空間分解能は 12 nm 程度である。近接場磁気力顕微鏡では 汎用の磁気力顕微鏡と比較して明瞭な磁場像が観察されていることがわかる。さらに、A-MFM は 磁場の単独計測ができるので、図(d)での A-MFM のラインプロファイルは、磁場のゼロレベルを 有しており、同時に磁場の符号の正負は試料面に垂直方向に対して、磁場極性ならびにその発生 源である表面磁極の極性を検出することができるので、高密度磁気記録媒体等の磁化状態解析に 有用な手法と考えられる。

図6に、A-MFMを用いて観察した、高密度磁気記録媒体のベクトル磁場計測像を示す⁽⁷⁾。観察に は自作したNi-Feソフト磁性探針を用いた。NF-MFMで得られた直流磁場像に対して、ソフト磁性探 針を励磁している交流電源との間の位相を調整することにより直流磁場の計測軸を試料面に垂直 方向から任意の角度に調整することができる。図の角度0は位相調整角である。図に見るように計 測軸方向を変化させることにより、試料面に垂直方向の磁場(0=4.5°, 184.5°)や、試料面に平行方向 の磁場(0=94.5°, 274.5°)等の任意の角度をなす計測軸方向で磁場計測が可能になることがわかる。A -MFMを用いたベクトル磁場計測法は磁気記録評価媒体等の微細磁区構造の解析に有用な手法と考 えられる。

(4-2) 探針の過渡振動を利用した垂直・面内磁場同時検出・磁気力顕微鏡技術

前項では、周期的な非共振磁気力による実効バネ定数の変化を利用した計測技術を紹介した。 本項では、ステップ的な実効バネ定数の変化を利用することで可能になる垂直・面内磁場同時検 出・磁気力顕微鏡技術^(11, 12)を紹介する。汎用の磁気力顕微鏡(MFM)では、磁性探針として、観 察試料面に対して垂直方向に磁化した探針(探針の磁気モーメントを探針の長手方向に磁化した 探針)が主に用いられており、MFMにより試料面に垂直方向の磁場の勾配(垂直磁場勾配)が画像 化されていた。これに対して、試料面に平行方向の磁場の勾配(面内磁場勾配)を画像化する場 合には、探針の磁気モーメントを観察試料面に対して平行方向に揃えた探針(面内磁化探針)を 用いる必要があるが、探針の磁化を先鋭部の長手方向に垂直に向けることは、形状磁気異方性エ ネルギー増加の観点から探針の保磁力を大幅に増加させることが必要となるので、面内磁化探針 の実現は容易ではなかった。本技術では、汎用のMFMに探針の周波数変位測定装置を付加するだけ で、垂直磁場および面内磁場を同時に計測・画像化することが可能になる。

垂直・面内磁場同時検出・磁気力顕微鏡では、カンチレバーを共振周波数近傍で加振した際の、 探針走査に伴う探針の過渡振動を利用する。探針には、試料面に垂直方向になるように、探針の 長手方向に着磁したハード磁性探針を用いる。試料面に垂直な垂直磁場の計測には、汎用MFMの位 相検出法を用い、同時に試料面に平行な面内磁場の計測には、探針の過渡振動に伴う、探針振動 の波形からゼロをよぎる、振幅がゼロとなる周波数の変化を検出する。

最初に垂直・面内磁場同時検出・磁気力顕微鏡の計測原理⁽¹¹⁾を述べる。

1) 計測原理

強制振動している探針で磁性体試料を走査すると、探針走査により探針が受ける磁場が変化するので、カンチレバーの実効的なバネ定数が変化する。磁性探針の運動方程式は次式で与えられる。

 $m(d^{2}z(t)/dt^{2}) + m\gamma(dz(t)/dt) + (k_{0} + \partial F(x)/dz)z(t) = F_{0}\cos(\omega_{d}t)$ (8) ここで、探針の移動方向をx方向とし、探針は $x = x_{0}$ から $x = x_{0} + \Delta x$ まで移動するとする。移動前の $x = x_{0}$ での探針の振動、および移動後の $x = x_{0} + \Delta x$ での探針の振動は次式で与えられる。

 $z(x_0) = A_0 \cos(\omega_d t + \theta_0) \quad (9)$

$$z(x_0 + \Delta x) = A_0' \cos(\omega_d t + \theta_0') + A_t \exp(-\gamma t/2) \cos(\omega_t t + \theta_t) \quad (10)$$

$$\omega_t = \sqrt{\frac{1}{m} \left(k_0 + \frac{\partial F(x_0 + \Delta x)}{\partial z} \right) - \frac{\gamma^2}{4}} \cong \sqrt{\frac{k_0}{m} - \frac{\gamma^2}{4}} + \frac{\omega_0}{2k_0} \frac{\partial F(x_0 + \Delta x)}{\partial z} = \omega_0' + \Delta \omega \quad (11)$$

$$\Box \Box \breve{\mathcal{C}}, \quad \omega_0' = \sqrt{\frac{k_0}{m} - \frac{\gamma^2}{4}}, \quad \Delta \omega = \frac{\omega_0}{2k_0} \frac{\partial F(x_0 + \Delta x)}{\partial z} \ \breve{\mathcal{C}} \ \breve{\mathcal{D}} \ \breve{\mathcal{C}},$$

したがって、探針が移動した直後には、探針の振動には加振周波数 ω_d と異なる周波数 ω_t をもつ、 過渡振動項が加わり、その強度は、時定数 $\tau = 2/\gamma = 2Q/\omega_0$ で減衰する。

(10)式を展開すると、

$$z(x_0 + \Delta x) = \left[A_0' + A_t \exp\left(-\frac{\gamma}{2}t\right)\right] \cos\left(\frac{\omega_d - \omega_t}{2}t + \frac{\theta_0' - \theta_t}{2}\right) \cos\left(\frac{\omega_d + \omega_t}{2}t + \frac{\theta_0' + \theta_t}{2}\right) - \left[A_0' + A_t \exp\left(-\frac{\gamma}{2}t\right)\right] \sin\left(\frac{\omega_d - \omega_t}{2}t + \frac{\theta_0' - \theta_t}{2}\right) \sin\left(\frac{\omega_d + \omega_t}{2}t + \frac{\theta_0' + \theta_t}{2}\right)$$
(12)

探針振動の波形は、振幅の包絡線が低周波数 $(\omega_d - \omega_t)/2$ で振動しながら減衰し、振幅がゼロを よぎる周波数は次式で与えられる。 $\omega_{c} = \frac{\omega_{d} + \omega_{t}}{2} = \frac{\omega_{d} + \omega_{0}' + \Delta\omega}{2} \quad (13)$ この振幅ゼロ周波数の探針走査に伴う変化は次式で与えられる。 $\frac{\partial \omega_{c}}{\partial x} = \frac{1}{2} \frac{\partial \Delta \omega}{\partial x} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \frac{\omega_{0}}{2k_{0}} \frac{\partial F(x)}{\partial z} \quad (14)$

ここで、単磁極型探針を仮定した場合には、 $F(x) = q_m H_z(x)$ となり、振幅ゼロ周波数の探針走 査に伴う変化は次式で与えられる。

 $\frac{\partial \omega_c}{\partial x} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \frac{\omega_0}{2k_0} q_m \frac{\partial H_z(x)}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial z} \frac{\omega_0}{2k_0} q_m \frac{\partial H_z(x)}{\partial x} = \frac{\omega_0 q_m}{4k_0} \frac{\partial^2 H_x(x)}{\partial z^2} \quad (15)$

ここでは、試料上の磁場が渦なしの場であることから $\frac{\partial H_z(x)}{\partial x} = \frac{\partial H_x(x)}{\partial z}$ の関係を用いている。

探針が移動後の振幅ゼロ周波数の変化は、探針が過渡振動しているときは一定であり、過渡振動が減衰した後は、探針は、当初の加振周波数 ω_d で振動することになる。この振幅ゼロ周波数の変化から、面内磁場の勾配の計測が可能となる。一方、過渡振動が減衰した後には、汎用 MFM 同様、探針振動の振幅あるいは位相の変化から、垂直磁場勾配の計測が可能となる。時分割で計測される、面内磁場勾配と垂直磁場勾配を比較した場合、面内磁場勾配の方が垂直磁場勾配より、微分階数が1回高くなっていることがわかる。微分効果は探針の伝達関数の観点から、空間周波数の高周波側の信号出力を周波数に比例する分だけ増加させる効果があるので、空間分解能を向上させる効果が期待できる。時定数を共振周波数 300 kHz のカンチレバーにおいて、大気中ならびに真空中でQが 500 および 8000 で見積もると、0.5m 秒および 8.5m 秒となり、真空中のみならず大気中においても十分に測定可能であることがわかる。

また、双磁極型探針を仮定した場合には、 $F(x) = m_z \partial H_z(x)/\partial z$ となり、ゼロ周波数の探針走査 に伴う変化は次式で与えられる。

 $\frac{\partial \omega_c}{\partial x} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \frac{\omega_0}{2k_0} m_z \frac{\partial H_z(x)}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial z} \frac{\omega_0}{2k_0} m_z \frac{\partial^2 H_z(x)}{\partial z \partial x} = \frac{\omega_0 q_m}{4k_0} \frac{\partial^2 H_x(x)}{\partial z^2} \quad (16)$

ここでも面内磁場勾配は、垂直磁場勾配と比較して、微分階数が1回高いことがわかる。定式 化の詳細については参考文献11を参照されたい。

2) 計測システム

図7 に、測定系のブロック図を示す。測定系は、汎用の振幅検出方式あるいは位相検出方式の 磁気力顕微鏡に位相同期回路 (PLL) 等の周波数検出装置を追加することで簡便に構成できる。観 察は、最初に表面形状像を、探針を一定の周波数で加振した状態で測定した後に、トレースモー ドを用いて探針試料間距離一定の下で、探針振動の振幅または位相と周波数を計測する。計測に は垂直磁化探針を用いる。

3) 観察例

図8(a)に、記録密度が50kfciのCoCrPt-SiO₂系垂直磁気記録媒体について観察した位相像、図8(b)-(d)に周波数像を各々示す。位相像と周波数像は同一の探針走査で観察している。図8(b)では、探針を本図の水平方向の左から右に走査している。図8(c)では、探針を本図の水平方向の左から右に走査している。図8(d)では、探針を本図の上下方向の上から下に走査している。図よ

り、位相像と周波数像では異なる磁気コントラストが観察されることがわかる。位相像では、記 録ビット部分の磁化が試料面垂直に上向きか下向きかを反映して、記録ビット全体が明あるいは 暗のコントラストを示す。一方、周波数像では、記録方向に隣接する記録ビットの境界部分が交 互に線状の明あるいは暗のコントラストを示す。ここで探針の走査方向と平行な記録ビット境界 では線状のコントラストは見られない。以上のことは、位相像が垂直磁場勾配像、周波数像が探 針走査方向と平行な面内磁場勾配像に対応していることを示している。

図8(e)、(f)に、位相像と周波数像の同一位置でのラインプロファイルを示す。同図には、垂直 媒体の記録方向における1次の垂直磁場勾配($\partial H_z(x)/\partial z$)と2次の面内磁場勾配($\partial^2 H_x(x)/\partial z^2$)の計 算結果も示してある。ここでは試料面に垂直方向をz方向、試料面に平行な探針移動方向をx方 向とした。探針が単磁極型の場合には、位相像は1次の垂直磁場勾配に対応することになる。な お、探針試料間距離を高分解能測定のために減少させた場合、探針先端の磁性膜の膜厚より探針 試料間距離が小さくなるので、探針は単磁極型と見なすことができる。

図の(e)、(f)の計算結果に示すように、垂直磁気記録媒体の記録ビットの境界では、(e)の垂直磁 場勾配ではゼロになるのに対して、(f)の面内磁場勾配では極値をとり、また、記録ビット境界の 近傍で(e)の垂直磁場勾配(1 次の勾配)では極値を示すが、その場所では、(f)の高次の面内磁場 勾配(2 次の勾配)ではゼロとなることがわかる。実験で得られたラインプロファイルにおいて も、同様の特徴を示していることから、位相変化を画像化したものが従来の垂直磁場勾配像に対 応しているのに対して、周波数変化を画像化したものは面内磁場勾配像に対応しており、面内磁 場勾配の次数は、垂直磁場勾配より高次であることがわかる。

図9に、周波数像(面内磁場勾配像)において、探針走査方向に対する記録トラック境界方向の角度(θ)に関する、面内磁場勾配の平均強度依存性を示す。本測定における記録密度は 500 kfci である。記録トラック境界方向と探針走査方向が平行($\theta = 0^{\circ}$)の場合は大きな面内磁場勾配強度が得られるが、 θ の増大に伴い磁場勾配の平均強度は cos θ に従いながらその強度が減少し、記録トラック境界方向と探針走査方向が直角($\theta = 90^{\circ}$)の場合にはほとんど観測されなくなる。これらのことから、本測定においては計測される面内磁場方向は探針の走査方向に一致することが実験的に確認できる。この現象により、観察試料に対して探針の走査方向を変化させるだけで、任意の方向の面内磁場の勾配を計測することができる。

図10に、本手法を利用して、垂直磁気記録媒体のノイズ解析を試みた例を示す。記録密度が500 kfciの垂直磁気記録媒体について、位相像(垂直磁場勾配像)を観察した結果を(a)に、周波数 像(面内磁場勾配像)を観察した結果を(b)にそれぞれ示す。探針の走査方向は本図の水平方向の 左から右である。この配置の周波数像(面内磁場勾配像)では、記録ビット境界は記録トラック 両端の水平方向から傾いた部分のみが観察されることになる。図(b)に見るように、記録ビットの 端部(記録トラック境界)において、水平方向から傾いたビット境界のみが実際に観察されてい ることがわかる。また、図(b)の周波数像(面内磁場勾配像)では記録ビットの内部で、外部の非 記録部と比較して低強度の均一な磁気コントラストが観察されており、記録ビット内部では磁化 方向が書込方向に向きやすいことを反映しているものと考えられる。しかしながら、位相像(垂 直磁場勾配像)の記録ビット部で、ビット間を跨いで斜め方向に連結して見える強い磁気コント ラストが、周波数像(面内磁場勾配像)でも繋がった線状に見えている。これは媒体の垂直磁化 成分の揺らぎに対応していると考えられる。

図11に、本手法を利用して、巨大磁気抵抗効果を示すLa_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃グラニュラー薄膜を観察した例を示す⁽¹²⁾。本薄膜は面内磁化膜であり、La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃結晶粒は粒界の非磁性絶縁相に取り囲まれており、その磁化方向は薄膜の面内方向にある。本薄膜の巨大磁気抵抗効果の起源は、導電性を示すLa_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃結晶粒の伝導電子の粒界の非磁性絶縁相を介したトンネル効果であり、隣接するLa_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃結晶粒の薄膜面内に向いている磁気モーメント間の角度に依存して、電気抵

抗の大きさが変化する。電気抵抗は、隣接磁性粒子間の磁気モーメントの方向が非磁性絶縁相を 介して平行である場合に極小となり、反平行である場合に極大となる。図の像は、本薄膜に磁場 を薄膜の面内方向で図の水平方向に印加した後の残留磁化状態で観察した像である。ここで粒間 の非磁性相は、磁気2重層として機能する。非磁性相は残留磁化状態では、図の粒界の模式図で 示したように、極性の異なる磁極から構成される磁気2重層となる。図の磁場勾配の計算結果に 見るように、位相信号(垂直磁場勾配信号)では、垂直磁場は非磁性相の界面の一方が極大で、 他方が極小となる。一方、周波数信号(面内磁場勾配信号)では、面内磁場は非磁性相の中央で 極大となる。図の結晶粒界での位相像と周波数像のラインプロファイルに見るように、計測され る垂直磁場勾配と面内磁場勾配はこの特徴を示していることがわかる。一方、薄膜の面内方向に 保磁力近傍まで磁場を印加した後の残留磁化がゼロ値付近となる場合では、粒界相は極性の同じ 磁極から構成される磁気2重層となる。この場合には、垂直磁場勾配と面内磁場勾配のラインプ ロファイルの特徴は、図11の場合と逆になり、垂直磁場勾配信号は非磁性相の中央で極大となり、 面内磁場勾配信号は非磁性相の界面の一方で極大、他方で極小となる。ここで信号強度は、磁気 モーメントの非磁性粒界層に対する垂直成分の大きさに比例して増加し、隣接する磁性結晶粒の 磁気モーメントが平行あるいは反平行で極大となる。したがって、垂直・面内磁場同時検出手法 を用いて、非磁性粒界相を観察し、信号強度を解析することにより、磁性結晶粒の磁気モーメン トの方向の解析が可能となる。また、隣接する磁性結晶粒が非磁性粒界相を介せずに接触してい る場合には、磁気2重層は形成されないので、粒界付近のこれらの磁場像が変化する。以上より、 垂直・面内磁場同時検出・磁気力顕微鏡は磁気記録媒体等のノイズ解析や磁性結晶粒間の磁気的 相互作用の解析等に有用な手法と考えられる。

(5)将来に向けて

本稿では、代表的なAFM磁気イメージング技術である、磁気力顕微鏡について、これまでの 技術の発展の経緯と、現在なされている新たな技術開発について概観した。今後の方向性として、 更なる空間分解能、時間分解能、機能性の向上がますます重要となる。その一例として、以下が 考えられる。

・原子分解能に向けた空間分解能の向上(交換相互作用力のイメージング等)

・GHz 以上の時間分解能の向上(GHz 以上の高周波磁場のイメージング、磁気共鳴のイメージング、 等)

・機能性の向上(周波数分光イメージング、強誘電強磁性共存体の観察に向けた電磁場同時イメ ージング、磁場勾配ではなく磁場の直接イメージング)

磁気力顕微鏡は、これらの新たな技術の発展により、磁性材料、磁気デバイスの評価ツールとして ますます有用となると考えている。

謝辞

本研究は、秋田大学の吉村哲・准教授、木下幸則・特任助教、江川元太・技術職員、研究グル ープの博士研究員、学生諸氏、および(株)日立ハイテクサイエンス、日東光器(株)、秋田県産業技 術センター、他との共同研究の成果である。ここに関係の方々に深謝する。

参考文献

[1] 石尾俊二, 齊藤準, 山岡武博: 磁気イメージングハンドブック(第4章 磁気力顕微鏡),(日

43

本磁気学会編),(共立出版),95-130 (2010).

- [2] H. Saito, H. Ikeya, G. Egawa, S. Ishio, and S. Yoshimura, Journal of Applied Physics, 105, 07D524 (2009).
- [3] W. Lu, Z. Li, K. Hatakeyama, G. Egawa, S. Yoshimura, and H. Saito, Applied Physics Letters, 96, 143104 (2010).
- [4] H. Saito, W. Lu, K. Hatakeyama, G. Egawa, and S. Yoshimura, Journal of Applied Physics, 107, 09D309 (2010).
- [5] W. Lu, K. Hatakeyama, G. Egawa, S. Yoshimura, and H. Saito, IEEE Transactions on Magnetics, 46, 1479-1482 (2010).
- [6] H. Saito, R. Ito, G. Egawa, Z. Li, and S. Yoshimura, Journal of Applied Physics, 109, 07E330 (2011).
- [7] Z. Li, K. Hatakeyama, G. Egawa, S. Yoshimura, and H. Saito, Applied Physics Letters, 100, 222405 (2012).
- [8] H. Saito, Z. Li, R. Ito, G. Egawa, and S. Yoshimura, The 56th Conference of Magnetism and Magnetic Materials (MMM 2011), DG-04 (2011)
- [9] H. Saito, R. Ito, Z. Li, G. Egawa, and S. Yoshimura, The International Magnetics Conference (Intermag 2012), AF-02 (2012).
- [10] S. Yasui, K. Kamachi, G. Egawa, S. Yoshimura, and H. Saito, The 2nd International Conference of the Asian Union of Magnetics Societies (ICAUMS 2012), 4pPS-118 (2012).
- [11] H. Saito, G. Egawa, S. Ishio, and Guoqing Li, Journal of Applied Physics, 103, 07D921 (2008).
- [12] J. Lu, Y. Kinoshita, G. Egawa, S. Yoshimura, H. Asano and H. Saito, Journal of Applied Physics, 112, 124110 (2012).

特徴	汎用の磁気力顕微鏡	交番磁気力顕微鏡
計測対象	主に, 直流磁場の勾配.	直流磁場および交流磁場の勾配.
得られる情報	磁気力の強度(実数情報). (通常, 他の力によりバイアスされてい る.)	磁気力単独の強度および位相(複素 数情報).
試料表面近傍で の磁気力計測	× (強い近距離力によりマスクされ る.)	O(ロックイン検出により可能.)
Spatial resolution	10 nm以上(真空雰囲気が必須.).	10 nm以下(大気雰囲気可能). 直流 磁場で6 nm ⁽⁹⁾ , 交流磁場8 nm ^{(3),(10)} を実 現.
磁場の極性, ゼ ロ検出	×	○(ゼロ磁場でゼロ信号. 垂直磁場 の方向が検出可能. 〉
磁場のベクトル 計測	×	○(交流磁場でストロボ計測 ^の ,直流 磁場でベクトル磁場計測 [®] が可能.)

表1 汎用磁気力顕微鏡とベクトル磁場検出・近接場磁気力顕微鏡の特徴



図 1 A-MFM による交流磁場計測の模 式図.



図3 A-MFM による磁気記録ヘッドの 交流磁場勾配像,線スペクトルおよび空 間スペクトル.



図 2 A-MFM による直流磁場計測の模 式図.



図4 A-MFM による磁気記録ヘッドの 交流磁場勾配のストロボ像.



図5 A-MFM による高密度磁気記録媒体の直流磁場勾配像,空間スペクトルおよび線スペクトル.



図6 A-MFMを用いて計測磁場方向を連続的に回転させた磁気記録媒体の直流磁場勾配像.



図7 垂直・面内磁場同時検出・磁 気力顕微鏡のブロック図.



図8 垂直磁気記録媒体における垂直・ 面内磁場同時検出・磁気力顕微鏡の観察 像とそのラインプロファイルおよび磁場 勾配プロファイルの計算結果.



図9 垂直磁気記録媒体における 平均した面内磁場勾配信号の探針 走査方向依存性.



図 10 垂直磁気記録媒体におけ る、垂直磁場像と、記録ビットに平 行方向での面内磁場像.



図 11 非磁性粒界層を有する Lao.7Sro.3MnO3 グ ラニュラー薄膜の表面凹凸像、垂直磁場像、面内 磁場像およびそのラインプロファイルおよび磁場 勾配プロファイルの計算結果.

走査型ホールプローブ顕微鏡

(Scanning Hall Probe Microscope)

山口明啓*・清水正義**・宮島英紀

慶應義塾大学 理工学部

*現所属:兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所
**現所属:日立製作所 中央研究所

目次

- 1. 走査型ホールプローブ顕微鏡 (SHPM) に至るまで
- 2. SHPM の測定原理と特徴
 - 2.1 測定原理:ホール効果について
 - 2.2 SHPM の利点と欠点
- 3. SHPM 装置の構成および基本性能
 - 3.1 装置開発について
 - 3.1.1 外部磁場印加部
 - 3.1.2 試料冷却部
 - 3.1.3 走查機構部
 - 3.1.4 制御部
 - 3.1.5 ホールプローブ
 - 3.2 制御系統について
 - 3.2.1 位置制御系統
 - 3.2.2 測定系統
 - 3.2.3 表示および入出力系統
 - 3.3 マイクロホールプローブに求められる仕様
 - 3.3.1 Si-MOSFET ホールプローブについて
 - 3.3.2 Si-MOSFET マイクロホールプローブの試作について
 - 3.3.3 Si-MOSFET マイクロホールプローブのマスク設計
 - 3.3.4 Si-MOSFET マイクロホールプローブの製作プロセス
 - 3.3.5 試作した Si-MOSFET ホールプローブの作製結果
 - 3.3.6 作製した Si-MOSFET マイクロホールプローブのホール効果測定
 - 3.3.7 SHPM を用いた試作ホールプローブの評価
- 4. SHPM を用いた研究および SHPM の適用例
 - 4.1 SmCo5 永久磁石の表面漏洩磁場像観察
 - 4.2 Sm₂Co₁₇ 永久磁石の表面漏洩磁場像の低温観察
 - 4.3 Sm₂Co₁₇ 永久磁石の表面磁区構造観察
 - 4.4 Sm₂Co₁₇ 永久磁石の局所磁化過程
 - 4.5 磁化反転機構
 - 4.6 その他の磁区観察について
- 5. SHPM のまとめと展望について

参考文献

1. 走査型ホールプローブ顕微鏡(SHPM)に至るまで

強磁性体の磁区構造を実験的に調べることは、Bitter¹⁾と、それとは独立に Hamos と Thiessen²⁾によって最初に行われた。Bitter は、強磁性体コロイド粒 子を強磁性体上に置き、コロイド粒子が磁壁周辺に凝集する姿を光学顕微鏡で 観察することに成功した。このように、Bitter 法の原理は、強磁性体の磁壁か ら漏れ出た磁束を微粒子の凝集として可視化し、その模様から強磁性体内部の 磁区構造を解析する手法である。したがって、用いるコロイド粒子の材質・サ イズ・形状などによって空間分解能が決まる。コロイド粒子を小さくすると、 空間分解能を上げられるが、粒子サイズが小さくなりすぎるとは超常磁性とな るので、漏洩磁束によって凝集されない。このような欠点はあるが、Bitter 法 は簡便な手法であったので、磁区観察の標準的な方法として利用されてきた。 ³⁻⁵⁾しかし、永久磁石のように磁気異方性が大きい強磁性体では、磁壁幅が狭い ので粒子の凝集が起こりにくく、高い空間分解能を持った磁区観察は難しい。

その後、Bitter 法の原理は、原子間力顕微鏡(AFM)を応用した磁気力顕微鏡 (MFM)⁶、超伝導量子干渉素子(SQUID)を利用した走査型 SQUID 顕微鏡 (SSM)⁷、後述するホール素子を用いた走査型ホールプローブ顕微鏡(SHPM)⁸ ²¹⁾などへ発展してきた。これらは、磁束を計測するセンサーをプローブとして 試料表面直上を走査する方法であり、高い空間分解能と高い磁束感度を持った 磁区構造観察が可能となった。一方、強磁性体の磁化過程を調べる上で外部磁 場を印加することは必須であるが、外部磁場を印加した状態下での顕微観察は 一部の顕微鏡でしかできないし、試料からの漏れ磁束分布を直接測定する手法 は、いまだ未完成である。特に、永久磁石の場合、自発磁化と保磁力が大きく、 磁化反転に強い外部磁場を印加する必要があるため、磁場中顕微観察は非常に 難しい。これは、磁束を計測するセンサーが、試料の漏れ磁場と外部磁場を原 理的に区別できない上、当時の技術では MFM や SQUID のセンサーを強磁場 下で動作させることができなかったからである。

外部磁場を印加した状態で、磁区構造観察ができる顕微鏡として、微小高感 度ホール素子を用いた走査型ホールプローブ顕微鏡(SHPM)がある。現在の原 型となる最初の走査型ホールプローブ顕微鏡は、1992年にBell研究所のA.M. Chang らによって試作された。⁹⁾彼らは、GaAs 基板を用いた2次元電子ガス (2DEG)微小ホール素子をピエゾ素子に取り付けたSHPMを開発した。このホ ール素子の感磁領域は0.35 µm×0.35 µmで、走査型トンネル顕微鏡(STM)を利 用して試料表面から0.2 µm程度の高さで走査する。彼らは、このSHPMを用 いて、磁気バブル材料YGdTmFe4.2Gao.8O12の磁区観察、超伝導体La1.85Sro.15CuO4 とNbからなる超伝導ネットワーク正方格子パターンの量子磁束の直接観察な ど行うことに成功している。その後、我が国をはじめ、英国のバース大学やイ ンペリアルカレッジ等で装置開発が進められ、現在では市販品として発売され ている。²²⁾開発された装置の一台では、磁気バブル材料 YGdTmFe4.2Ga0.8O12で は、その特徴的な迷図磁区構造に起因する表面漏洩磁場分布が得られた。観察 された磁区の幅は1μm 程度であり、感磁領域の大きさを反映して十分な空間 分解能があることが示され、SHPM が強磁場環境下での磁気イメージング装置 として適していることが確認された。

2. SHPM の測定原理と特徴

2.1 測定原理:ホール効果について

マイクロホール素子の原理であるホール効果について示す。原理の詳細は、磁気イメージング・ハンドブック²³⁾に記載してあるので、ここでは簡単に 原理のみ説明する。ホール効果とは、物体に電流*j*を流し、これと直交する 方向に磁場 **B**を印加すると、電流と磁場に垂直な方向に電場E_yが生じる現 象で、1879年に E. H. Hall によって発見された。

図1のような導体にホール電流 $I_{\rm H}$ を流し、導体に磁束密度Bを角度 θ 方向に 印加すると、ホール電圧(起電力) $V_{\rm H}$ は、次式で与えられる。

$$V_{\rm H} = \frac{\kappa_{\rm H}}{d} I_{\rm H} B \cos\theta + K_e I_{\rm H} \tag{1}$$

ここで、 $K_{\rm H}$ は有効ホール係数、dは素子の厚さ、 θ はホール素子面に入射する 磁場の傾き、 $K_{\rm e}$ は不平衡係数を表す。第二項は不平衡電圧と呼ばれる電圧で、 磁場がゼロでも存在する電圧であり、オペアンプの「オフセット電圧」に相 当する。不平衡電圧が発生する原因は、素子の幾何学的なアンバランスや素 子の不均一性などによるが、ホール素子に電流を流すだけで発生するので、 不平衡電圧が小さい素子を取捨選択する必要がある。

有効ホール係数 $K_{\rm H}$ は、ホール係数 $R_{\rm H}$ にホール素子の形状による性能指数 を乗じた係数である。ホール素子は、磁束を検出するための面積を必ず必要 とする素子であり、そのため、磁束を検出する面の形状は性能を決定する重 要な因子である。特に形状効果は、磁気抵抗を増加させる主因となるととも に、ホール効果を抑制する働きもある(詳細は、磁気イメージング・ハンド ブック²³⁾を参照)。現在の主流となっているのは、形状効果を考慮して考 案された「十字型ホール素子」である。²⁴⁻²⁶⁾ ホール係数は、自由電子モデルによると伝導キャリア濃度をnとすると、 $R_{H} = -\frac{1}{ne}$ と表される。ホール係数の符号はキャリアの符号に対応し、ここ ではキャリアが負の電荷を持った電子であることを示している。電場 E_{y} は 伝導電子の磁場からのローレンツ力によって試料端面に生じた分極電荷に よるもので、y方向に電流が流れない場合、ローレンツ力と釣り合っている。 このように、ホール係数は、自由電子モデルでは緩和時間によらず、キャリ ア密度が低いほどその絶対値が大きい。ホール係数の測定により、キャリア の密度や電荷の符号を評価することができる。

ホール移動度 $\mu_{\rm H}$ は、ホール係数の絶対値 $|R_{\rm H}|$ と電気伝導率 σ_0 を使い、

$$\mu_H = |R_H|\sigma_0 \tag{2}$$

と与えられるので、有効ホール係数K_Hは電気伝導率と移動度を用いて

$$K_{\rm H} = f_{\rm H} R_{\rm H} = f_{\rm H} \frac{\mu_{\rm H}}{\sigma_0} \tag{3}$$

と表せる。これから、微小な磁束密度を検出するためには、電気伝導率が小 さく、移動度の大きな材料が必要になることがわかる。金属材料では、一般 的に移動度が大きいが、同時に電気伝導率も大きいので、有効ホール係数を 大きくすることは難しい。電気伝導率が小さく、移動度が大きい系の可能性 として、少数キャリア系の材料が挙げられる。このような事情から、実用的 なホール素子として、2次元電子ガス系の素子が開発されてきた。

2.2 SHPM の利点と欠点

SHPM の特徴は、試料表面から漏洩する磁束がつくる磁場を測定する点である。その磁場感度は、一般的には 800 A/m 以下で、空間分解能は 1 µm 以下となっており、高感度で高分解能の磁気イメージングを得ることができる。 最近では、磁場感度が 0.8 A/m 以下で空間分解能が 50 nm 程度まで向上させたものもある^{11,20)}。また、SHPM では漏洩磁場の定量測定も可能であり、超 伝導体中の磁束量子の観測などにも用いられている。ホール素子はホール電 Eと磁場の比例関係が 800 kA/m 以上の強磁場領域まで安定して維持される という特徴があり、外部磁場成分を補正するのに複雑な計算処理が必要ない。 したがって、SHPM は外部強磁場中での測定に対して、非常に有効である。 また、低温でも安定して稼働するホール素子を用いることで、測定温度範囲 も極低温から室温以上の温度領域まで安定して測定ができる。

以上が SHPM の利点である。一方、SHPM には次のような欠点もある。 第一は、マイクロホール素子が機械的に壊れやすいことである。SHPM 用 GaAs-2DEG ホール素子は開発当初には市販されていなかったので、入手が 困難であった。このため、走査中に試料と接触して素子が壊れると一大事で あり、研究どころではない。当時、半導体メーカーにホール素子の作製を依 頼すると、一ロット1万個単位で 300 万円と言われた経緯があり、後述す るように結局研究費等の問題で自作した。しかし、最近では、SHPM とその 専用マイクロホール素子が市販されており、大量生産の恩恵を受けて、品質 の安定したものが比較的安価に入手できるようになった。

第二の問題点は、ホール素子はセンサー部に感磁領域と呼ばれる有限の 面積を必要とすることである。これが空間分解能の限界となる。走査型トン ネル顕微鏡(STM)のように原子一個まで観察することは不可能である。

3. SHPM 装置の構成および基本性能

3.1 装置開発について 18)

永久磁石の磁化反転過程における磁気イメジージングの磁場変化を観察する 手段として SHPM 装置を開発した。¹⁸、SHPM 装置を製作するにあたり、磁 場や温度によらず,常に等しい領域を同程度の感度で簡易に測定できるように 留意した。特に、外部磁場変化による系統的な磁気イメージングを得る上で、 測定位置が毎回再現するようにしることが大切である。磁場や温度が変化する と磁歪や熱膨張・熱収縮により走査ステージや装置が微小に変形・移動してし まう。これを補正するために、試料に定点マークをして走査位置を較正する方 法などもあるが、装置が複雑になること、試料を加工する必要があるなどの問 題がある。そこで、このような位置制御を最小限に押さえるように、磁歪・熱 変形によって走査位置が変化しないよう装置本体の設計を検討した。

試料表面から漏れ出る漏洩磁場を正確に測定するために、外部磁場の方向と

試料からの漏洩磁場の方向が同一になるように設計した。理由は、外部磁場を 均一に印加し、その大きさを別のホール素子で正確に測定することで、試料表 面からの漏洩磁場の成分を正確に測定できるようになるからである。もし、外 部磁場の印加方向とマイクロホール素子の感磁領域が垂直でなかったならば、 外部磁場の成分をバックグランドとして検出してしまい、正確な表面漏洩磁場 分布をイメージングすることは困難になると考えられる。このような配置では、 特に薄膜試料において、形状磁気異方性が存在するため、磁化を飽和させるた めには、他の面内方向により大きな磁場を印加する必要があるので、電磁石を 用いて、試料に均一な磁場(最高 16 kOe(1.27 MA/m))を印加できるようにし た。

強磁性体の特性は、キュリー温度付近で顕著な温度変化をする。磁気デバイ ス等に利用されている強磁性体のキュリー温度は、一般に室温より数百 K ほど 高いが、磁性半導体などのキュリー温度は数十 K である。したがって、磁気イ メージング顕微鏡は、広範な温度領域で活用されるようにすることが必要であ る。本装置では、低温(20 K)から室温まで試料温度を変えて測定できるように した。

ホール素子の測定感度は、低温では、室温での感度よりも同程度か増大する。 しかし、ナローギャップの半導体を用いた高感度ホール素子では、数百 K 以上 の高温になると熱ノイズの影響を受けて感度が急激に落ちてしまう。このよう に測定温度範囲や漏えい磁場強度の大きさを考慮して、最適のホール素子を選 定する必要がある。

SHPM は低温から室温までの測定に優れている。また、液体ヘリウムを用いて試料のみを間接冷却することで、装置全体の熱変化を最低限に抑えられるようにした。

以上の性能を表1にまとめて示す。

装置は、外部磁場印加部、試料冷却部、走査機構部、制御部およびホールプ ローブの5つのブロックから構成されている。装置全体の模式図を図2に、ホ ールプローブの先端部の模式図を図3に示す。以下にそれぞれのブロックにつ いて詳述する。

- 7 -

56

3.1.1 外部磁場印加部

外部磁場の印加には、最大印加磁場 16 kOe(1.27 MA/m)の常伝導電磁石を用 いた。上述したように利便性および安定性の問題から、試料走査方向を水平方 向にする必要があり、磁場の印加方向は、垂直とした。図2と図4のような垂 直方向にコイルが並ぶように電磁石を製作した。下段のコイルは、走査機構部 を載せるスライドレール機構が取り付けられ(図4)、走査機構部を固定する役 目も兼ねている。電磁石は、防振台の上に固定され、電磁石および走査機構部 は振動から守られるとともに、常に水平に保たれるようにした。コイルを台座 にすることで、幅5 cmの磁極間隙を走査機構部の主要部分で有効に利用でき る。また、電磁石と一体にすることにより電磁石の磁歪によって走査機構部と の相対位置が動くことを防ぐことができる。磁極直径を7 cm と大きく取るこ とにより試料および走査ステージ全体が均一な磁場中に入るようにした。これ により、強磁場印加を行った際に磁極周辺に発生する大きな磁場勾配によって 走査ステージが力を受けることを極力避けられるようにした。

コイルの冷却には冷却水を循環させる方法を用いた。励磁用電源は、バイポ ーラ型で外部からのアナログ入力で制御できるようにした。これは、空冷式の ものを用いた。電磁石、励磁用電源、防振台および冷却水循環装置の仕様を表 1にまとめた。

3.1.2 試料冷却部

試料冷却部は、低温クライオスタッド、Heトランスファーラインとクライオ スタッド内の試料冷却器により成り立っている。低温クライオスタッドは試料 走査機構とともに、電磁石の下段コイルに取り付けたレール上の台車に載せら れている。

クライオスタッドは、弁当箱のような形をしており、その中央部がすっぽり 磁極間隙中に導入される構造となっている。図4ならびに図5に示すとおり、 手前、および左側面に、走査ステージとその駆動機構を結ぶ動力伝達棒用を通 すウィルソンシールドを配置した。また、底面にホールプローブの高さを走査 する動力伝達棒用のウィルソンシールドを配置した。さらに、奥側側面に、液 体へリウムの導入口と、ヘリウムガスの回収口を設け、内部でフレキシブルな 配管を用いて試料冷却器に接合した。この他、クライオスタッド内を真空引き する配管、ホール素子、トンネル電極、z 軸用ピエゾ素子の信号ケーブルと温 度制御用ヒーター用の接点とのぞき窓が2つ取り付けられている。上面は、取 り外し可能にして、試料およびホールプローブの取り付けが広い視野で簡単に 行えるようにした。

クライオスタッド内部には、試料冷却器、走査ステージ、ホールプローブの 取り付け台座および台座の z 軸移動用ピエゾ素子が収まっている。試料冷却部 および走査機構部の詳細を図 6 に示す。

試料冷却器は、内部に液体ヘリウムを流すことで冷却する。また、冷却器に は、温度制御用ヒーターと温度計が取り付けられており 20 K から室温の間で 任意の温度に制御を行うことができる。試料は、試料冷却器の上面に取り付け ることにより、間接冷却する。また、ホールプローブも、冷却器から伸ばした 熱アンカー用の金属ワイヤを接合することにより冷却し、ホールプローブから 試料への熱流入を防ぎ試料温度を安定できるようにした。また、クライオスタ ッド内を真空にすることで外部からの熱流入を防ぐようにした。

3.1.3 走查機構部

走査機構部は、試料を x,y 方向に移動させる走査ステージ部と、ホールプロ ーブを z 方向に移動させるプローブ高さ移動機構部の2つからなる。x,y 方向 と z 方向は異なった制御能力を必要とするため、その特徴にあった構造とした。

共通の内容として、駆動力に、ステッピングモータとピエゾ素子を併用して 移動量と分解能を両立させる方式とした。走査ステージ部と駆動部を分離する ことで、駆動部を磁極間隙から遠い位置に設置し、ステッピングモータに、電 磁石で発生した磁場の影響が及ばないようにした。また、走査機構部の高さを 小さくすることができ、磁極間隙中に取り付けできるようになった。

x,y 走査ステージ部は、走査機構が温度変化および外部磁場による影響を受けても常に絶対位置を決定できるようにした。外部磁場の影響によりステッピングモータが暴走すること、低温にするとピエゾ素子の駆動量が数十分の一になること、外部磁場により走査ステージが歪んだり移動したりすることの3つの問題の解決に取り組んだ。ステッピングモータに関しては先の通り電磁石の

- 9 -

磁極間隙外の遠い位置に設置することで解決した。ピエゾ素子に関しても、ス テッピングモータと同じ位置に置くことで、クライオスタッドの外側になり常 に室温で駆動できるようにした。走査ステージ部と駆動部は、動力伝達棒によ ってクライオスタッドを貫いて繋げた。最後の走査ステージの歪む問題に関し ては、走査ステージを非磁性のものにするとともに、磁極間隙中心と走査ステ ージの中心を合わせることで、外部磁場に対して対称な位置にして強磁場でも 水平面内で特定の方向に力を受けないようにした。これらのアイデアにより、 フィードバック制御することなくサブミクロンオーダーまで位置制御できるよ うにした。

また、低温測定ではクライオスタッドを真空にする必要があるが、この場合 でも常温・常圧中測定と同様に走査ステージが安定して動くようにした。クラ イオスタッド内を真空にすると動力伝達棒は、圧力差によりクライオスタッド 内へと引き込まれる力を受けるが、この影響によりステージ位置が変化しない よう次の対策を行った。動力伝達棒は、駆動部にしっかり固定することで、ク ライオスタッド内部に引き込まれることを防いだ。一方走査ステージは x,y 両 方向に自由なに移動できる必要があるため、x,y それぞれの動力伝達棒と走査 ステージは固定させない。動力伝達棒の先端にサファイヤ製のボールベアリン グを取り付け、走査ステージを点で支えるようにした。走査ステージは、ベリ ウムカッパー(BeCu)でできたバネを用いて x,y 方向それぞれ動力部側に力を受 けるようにし、走査ステージを動力伝達棒の先端でしっかり支えた状態が維持 できるようにした。これらにより、クライオスタッドを真空にしても走査ステ ージが位置ずれすることなく、安定した走査ができるようにした。

走査ステージと動力部を分離するシステムでは、装置のスペース設計に自由 度が生まれ、磁極間隙内に設置が可能となった一方で、走査機構が x,y 横方向 に大きくなった。これは、走査ステージの応答速度を鈍らせるため、高速な位 置制御ができない。しかし、フィードバック制御をしないことと、SHPM は分 単位で測定する装置であり走査ステージを高速に移動させる必要がないことか ら問題とならないと考えた。

一方、z 軸方向へ移動させるプローブに関しては、ホール素子をトンネル電流の検出に応じてフィードバック制御する必要があり、機敏に動く必要がある。 また、ナノメートルオーダーでの制御が必要となる。一方で、トンネル電流に

- 10 -

59

より試料とプローブの距離がわかるため、絶対位置を保証する必要がない。そ こで、ピエゾ素子をクライオスタッド内に設置した。ステッピングモータは、 外部磁場の影響がないクライオスタッドの外部に設置した。プローブは、1つ の軸方向への移動のみで良いため、クライオスタッド外の駆動部とプローブ台 座はしっかり固定されている。このようにすることで、プローブは特にピエゾ 素子を用いた微動制御で、機敏に動かすことができるとともに、駆動部とプロ ーブを一体化することで外部からの振動などの影響が及ばないようにした。

3.1.4 制御部

制御部は、ホール効果測定用機器、トンネル電流検出器および z 軸位置制御 フィードバック回路、ピエゾ素子印加電源、ステッピングモータ制御器、温度 コントローラとこれらを制御するパーソナルコンピュータ(PC)によって成り 立っている。図 7 に回路図を示す。(制御ブロック図については、磁気イメージ ング・ハンドブックを参照。23)

ホール効果測定器は微小マイクロホール素子に対応するために、一般的に用 いられる高感度な AC 測定ではなく DC 測定を用いた。これは、ホール素子形 状の非対称性により発生する大きなバイアス電圧に対応するためである。また、 マイクロホール素子用に3チャンネルと外部磁場測定用の合計4チャンネルの ガウスメータを有し、それぞれ独立に素子に定電流を流す回路とホール電圧信 号の増幅回路が用意されており同時に測定することができるようにした。素子 に流す電流およびホール電圧の増幅率は PC より設定できる。また、オフセッ ト電圧は、ホール効果測定器のダイアルにより調整することができるようにし た。ホール電圧は、装置のデジタル表示器に表示することができる他、PC の AD コンバータに4チャンネルがそれぞれ独立につながっており、PC で同時に 測定することが可能である。

トンネル電流検出器は、トンネル電極と試料間に電位差を与える電源、トン ネル電流を検出し電圧(トンネル電圧)に変換する電流・電圧変換回路からなって いる。トンネル電極と試料間の電位差は、100 mV に設定し、これは PC から の制御によらず常に印加される。トンネル電流が流れると交換回路により、ト ンネル電圧が発生する。試料とプローブ間の設定距離を示す基準電圧とともに、

- 11 -

コンパレータ回路に送られ、ピエゾ素子印加電圧をトンネル電圧と基準電圧が 等しくなるようにフィードバックするアナログ回路に導かれ、ピエゾ素子フィ ードバック信号を出力する。これらのフィードバック機構は、独立の回路によ り成り立っており、PC の暴走があっても動作し続け、常にプローブと試料の 接触しない安全な構造となっている。トンネル電極一試料間の電圧の極性はど ちらでも測定が可能であるが、接地はトンネル電極側にし、トンネル電流がホ ール素子へリークしないようにした。PC からは、トンネル電圧のモニタおよ び、基準電圧を設定することができる。

ピエゾ素子印加電源は、x,y,z 方向に独立に3台設けた。x,y 方向は同じもの で、PCのD/Aボードからの0~10Vの出力を0~300Vに増幅しピエゾ素子 に送る役割を担う。このときピエゾ素子の長さは約50μm変化する。走査ステ ージをあらかじめレーザー干渉を用いた計測器でキャリブレーションを行い、 PCからは0.01μm単位で制御できるようにした。

ー方、ホールプローブを移動する z 方向ピエゾ素子制御は、PC の D/A ボードからの信号 (0~2.5 V) とトンネル電流検出器からのピエゾ素子フィードバック信号 (0~2.5 V) の和 (0~5 V) を 0~150 V に増幅しピエゾ素子を約 5 μ m 伸縮する。PC からのホールプローブの位置制御によりホールプローブを 2.5 μ m 移動でき、残りの 2.5 μ m はホールプローブと試料間高さを一定に保つ フィードバックに用いられる。

ステッピングモータ制御器は、x,y,z方向独立に3つ同じものを用いた。ステ ッピングモータは、1ステップ 0.1 μm で、ステップ単位で PC より制御する ことができるようにした。

温度コントローラは、PCより設定の温度に、PID 制御を用いて、試料冷却器 内のヒーターに電流を流すことにより制御を行うようにした。

これらの制御機器と電磁石電源は、すべて PC と接続され、Microsoft Visual Basic で作成された1つのプログラムにより集中制御される。PC と制御機器 は、アナログ入出力ボードおよびデジタル入出力ボードにより繋げた。アナロ グ入出力ボードを用いることにより多チャンネルのデータ入出力を高速に処理 することができ、測定時間の短縮を図った。

- 12 -

3.1.5 ホールプローブ

ホールプローブは、素子基板サイズが3~7ミリ四方、厚さ500µmで、感 磁領域を形成した基板が露出しているものを用いた。ホールプローブ先端付近 の模式図を図3に示す。素子の感磁領域は基板の1つの頂点の近傍にあり、対 角の頂点を含む2辺に電極が並べられ、これらに向かって、素子から基板上を 配線が伸びる構造を持つ。一方、感磁領域近傍の頂点には、金属が蒸着され、 素子と同様に配線が1辺にそって伸びている。この金属線の頂点(トンネル電 極)は、試料走査時に試料と、素子基板間のトンネル電流を計測するプローブ として利用される。

このホール素子は、図 8(a)に示す専用のプリント基板上に銀ペーストを用いて固定される。素子基板とプリント基板間は、Al ボンディングまたは Cu 線を、 銀ペーストを用いて電極に接合しプリント基板まで配線した。

ホールプローブの顕微鏡への取り付けには、ネジ2つを用いる。図 8(b)に示 す取り付け台座に、感磁領域がある面を下にしてはめこみ、ネジ2つによりし っかり取り付ける。このとき、取り付け台座から出ている 12 本の電極ピンと プリント基板上の接点が接触し、回路がつながる。ホールプローブは、試料の 交換や角度調整の際、頻繁に取り外しを行うことが求められるため、毎回配線 する必要があり、半田付けやコネクタなどを必要としないシステムを作った。

ホールプローブの固定台座は、z 軸移動ステージに取り付けられており、ホ ールプローブと、固定台座全体が一体となって上下に移動する構造となってい る。ホールプローブは、取り付け台座とプリント基板間に専用のスペーサを挟 むことで試料表面との角度を調整することができるようにした。

本研究では、以下に述べるホール素子を用いた。

(1) GaAs/AlGaAs-2DEG ホール素子

GaAs に AlGaAs をエピタキシャル成長させた基板を用いた。GaAs と AlGaAs の界面に、構造に起因して2次元電子ガスが誘起され、低 抵抗で大きなホール効果を発生する。十字の形状をしたホールバーを AlGaAs/GaAs 層をエッチングすることにより形成し、これに電極を形 成しホール素子とした。ホール係数は、0.3 Ω/G を示し、非常に高感 度な素子である。

これは、市販のものでトンネル電極が形成されておりず、ホールプロ ーブを試料に接近させる方法として目視を用いることしかできない。 また、高さ検出によるフィードバックがないため、試料面に追従して接 近させることができない。購入後、後から独自にトンネル電極を形成す ることも、ホール素子近傍に電極を形成する必要があり、不可能である。 このため、SHPM 装置のテスト用として用いた。

(2) Si doped-GaAs ホールプローブ

GaAs 基板上に Si をキャリアドープして導体路を形成したものであ る。感磁領域が、3,5,10 μm 四方のものを3種類用いた。STM 用の電 極が基板の角に Au 蒸着により形成されているもので、この角から感磁 領域までは、200 μm 程度離れている。ホール係数は、0.01 Ω/G 程度で ある。STM 電極が取り付けられているためプローブと試料間距離をト ンネル電流によって計測でき、感磁領域と試料間の感磁領域間隔を 1 μm 以下に接近させることができる。これは、昭和電工で作成されたも ので、東京大学の為ヶ井研究室より頂いたものである。

(3) Si-MOSFET 型ホール素子

Si 基板上にホール素子を形成した。Si 基板は、これまで多く用いら れてきた GaAs 基板と比較して壊れにくく、加工が容易であるため、 ホールプローブとして有望である。^{21,27)}一方、Si はそのままではほと んどホール効果を示さないため、MOSFET 構造を用いることにより、 GaAs/AlGaAs-2DEG と同様の電子ガスを誘起する構造を形成し良好 なホール素子を作成した。本研究で、独自に設計・試作を行った。Si-MOSFET に関しては、3.3 節にて詳細に述べる。

3.2 制御系統について 18)

本装置は、PCより測定プログラムですべての制御を行い、測定を行う。本装置 では、Visual Basic 6.0を用いて測定プログラムを作成した。位置制御系統、測 定系統、表示および入出力系統により構成される。以下、それぞれの系統の制御 の詳細を記述する。

3.2.1 位置制御系統

位置制御系統は、x,y 方向の走査ステージおよび z 方向のホールプローブの高 さ制御からなる。それぞれの方向で、ピエゾ素子の制御とステッピングモータの 制御を行う。

x,y 軸の動作について示す。ピエゾ素子とステッピングモータは独立に制御し、 PC 上から集中管理し、位置情報を共有する。測定範囲が、50 µm 以下の時、ピ エゾ素子で走査制御する。ピエゾ素子の制御フローチャートを図 9 に示す。ピ エゾ素子は、PC の D/A ボードより 0 ~ 10 V の電圧を出力し制御する。移動命 令ごとに、D/A ボードの出力電圧を変化させる。移動時は、1 ステップ移動する ごとに、トンネル電流を検出し、しきい値以下であることを確認して次のステッ プに進む。もし、しきい値を超え、ホールプローブと試料の接触の危険があると きは、z 軸をリフトアップする命令を送るようになっている。

走査範囲が、50 μm を超える設定の場合、ステッピングモータ制御となる。 ステッピングモータは、ステッピングモータ制御器にデジタル信号を送り必要 ステップ(1ステップ=0.1 μm)移動させる。最大移動範囲は、6 mm である。 座標から移動方向、移動量を算出し命令をステッピングモータ制御器に送る。

一方、z軸はトンネル電流検出動作となる。フローチャートを図 10 に示す。 トンネル電流検出動作は、ピエゾ素子とステッピングモータを組み合わせて制 御する。まず、ピエゾ素子を利用最大値まで伸ばす(ホールプローブは試料から 離れる)。ピエゾ素子を縮めてホールプローブを接近させ、トンネル電流を検出 する。トンネル電流がしきい値に達すると終了する。しきい値に達せずにピエゾ 素子が最小値になった場合は、ピエゾ素子をいったん最大値にし、ステッピング モータを制御し、ピエゾ素子で接近させた量を下げる。その後、ピエゾ素子を再 度縮めて接近させる。トンネル電流がしきい値になるまでこの動作を繰り返す。

リフトアップ動作は、x,y 移動中に接触の危険があった場合に発生する。z 軸 ピエゾ素子に印加する電圧を変化させ、ピエゾ素子を伸ばしホールプローブを 遠ざける。ピエゾ素子が最大値まで伸びると、ステッピングモータで遠ざけ、ピ エゾ素子を縮める。

3.2.2 測定系統

測定系のフローチャートを図 11 に示す。まず、STM モード、SHPM モードで 異なった動作をする。STM モードでは、つぎの動作をする。x 方向に 1 ステッ プ移動させ、z 軸ピエゾ入力電圧(最終的に z 軸ピエゾ素子用アンプに入力する 値で、PCからの制御系プログラムからのz軸ピエゾ素子電圧信号とトンネル電 流によるフィードバック信号の和と、位置に換算した値を PC のメモリに格納 する。外部磁場用ガウスメータおよびマイクロホール素子の出力電圧および、磁 場に換算した値を PC のメモリに格納する。これを x 方向のステップが設定値 に達するまで繰り返す。x 方向を測定開始位置に戻し、y 方向を1ステップ進め る。上記 x 方向走査および測定を行う。これを y 方向のステップが規定値に達 するまで繰り返す。x,y 方向の位置を測定開始位置に戻して終了する。

SHPM モードは、STM モードと測定時の動作が異なる。トンネル電流検出を 行い、しきい値を超える場合は、リフトアップ動作する。ホール効果測定器(ガ ウスメータ)のすべてのチャンネルの値を読み取り、磁束密度に換算しメモリに 保存する。このモードは、試料の凹凸が大きいときや、広範囲を走査するなどア ナログフィードバック制御では高さを制御しきれない場合や、トンネル電流が 計測できないほど試料から遠ざけて測定する場合などに用いる。

3.2.3 表示および入出力系統

画面表示、キーボードおよびマウスから入力の受付、ファイル保存などを行う。 待機時は、位置制御系の手動操作として、x,y,z 方向それぞれついて、ステッピ ングモータとピエゾ素子の位置制御をキーボード入力から行うことができる。 トンネル電流検出系統を独立して動かすことができる。その他、アナログフィー ドバックの ON/OFF 制御が、トンネル電圧しきい値の設定、ホール係数の設定、 外部磁場設定、温度設定も、このプログラム上から行う。

測定中は、走査座標、外部磁場、ホールプローブの高さ、磁束密度が逐次数値 で表示される。測定を停止すること、z軸ステッピングモータの制御を行うこと ができる。

測定終了後、メモリに保存した測定結果は、自動的にファイルに保存され、画面上にホールプローブの磁束密度の2次元分布がカラーマップで表示される。 必要なデータは、x,y座標を用いた表データとして別途保存することができる。 測定停止時は、ファイルへの自動保存のみが行われる。

ちなみに開発した本装置では、1回の走査に要する時間は、走査範囲 50 μm 以下、走査ポイント 100 ×100 でピエゾ素子を用いた位置制御で、7 分 30 秒、 50 μm 以上では、ステッピングモータを用いるため 15 分程度である。温度調整 は、室温から、20 K まで冷却し、温度を安定させるのに 15 分程度、10 度温度 変化させ安定させるのに 5 分程度を要する。

3.3 マイクロホールプローブに求められる仕様

さて、上述した内容が装置本体の仕様と性能等であるが、重要なのは感磁領域 がマイクロ・ナノメートルサイズのマイクロホールプローブを入手して装置本 体に組み込むことである。ここでは、その心臓部となるマイクロホールプロー ブとして求められる要件について以下のようにまとめる。

(1) 機械的に強く、試料と接触等があっても基板の先端が欠けることがないこと。

(2) 高感度で、強磁場まで直線性があること。

(3) 低温で駆動できること。

(4) 感磁領域が、空間分解能を決めるので、可能な限り微小であること。

(5) プローブは、消耗品の特徴を持っており、比較的安価に入手できること。

特に、本研究では(1),(2)の条件を満たし、(3)(4)の条件もそれなりに満たす可 能性を持ったホールプローブの試作を行った。(5)については、SHPM を市販 化し広く利用されるために重要であるが、試作段階では評価対象外とした。

表 2 に一般的によく用いられるマイクロホール素子を構成する材料特性についてまとめた。GaAs-2DEG 系のホール素子は出力ホール電圧が InSb 系に比較して小さいが、温度安定性がよいことが図 12 からわかる。²⁸⁾

3.3.1 Si-MOSFET ホールプローブについて²¹⁾

実用的ホールプローブは、基板として半導体を用いる必要があるが、多くの半 導体、特にホール係数の大きな InSb、InAs やイオンドーピングにより良質な GaAsⅢ-V族化合物半導体は、非常に脆く、実用的なプローブとして大きな欠 点を持っている。

さて、Si はこれらの半導体に比べて丈夫である上、入手しやすい。また、加 工装置が身近にあり、利用しやすい。Si を用いたホールプローブは、これまで 同一基板上にデバイスを形成することで増幅回路までを一体で作ることがで きるという利点から、わずかだが用いられてきたが、ホール係数が小さいので、 ホールプローブで必要な微小ホールプローブとしては利用しにくい。

MOFET 構造(Metal Oxide Field Effect Transistor)は、GaAs/AlGaAs-2 次元電子系基板と同じ効果を持たせることができること、ゲート電極に電圧を 印加することにより電極の下に電子ガスを誘起することができること、などの 点から良好なホールプローブとして利用される期待できる。しかし、MOSFET はホールプローブとしての実績がほとんどない。これは、ゲート電極に電圧を 印加するためにゲート電圧印加用の定電圧電源が余分に必要なこと、素子構造 が複雑になり製造プロセスが増えることなどの欠点があるためである。

このような欠点を打破すれば、Si-MOSFET 構造は GaAs/AlGaAs 2 次元電 子系と同程度の感度、温度特性が期待できる。特に、Si-MOSFET では一般的 な半導体プロセスを流用できることから、素子の微小化が可能で、現在µm サ イズにとどまっているホールプローブの空間分解能を向上させる手段として 有望である。

3.3.2 Si-MOSFET マイクロホールプローブの試作について

GaAs-2DEG マイクロホール素子は、現在では比較的特性の良い GaAs-2DEG 基板が入手可能であるとはいえ、価格も高い。一方、Si は比較的機械特性が 良いし、価格も安く入手が簡単である。しかし、移動度が低いので、Si をそ のまま使用するとホール素子の感度が大きくならない。そこで、MOSFET 構 造を作り、それをホール素子とすることに辿り着いた。理由は、研究資金の枯 渇問題と研究者としての自負心である。加えて、電子系の学部の学生実験にお いて Si-MOSFET の作製実験を行っており、インフラとプロセス等すでに揃 っていたからである。

さて、Si-MOSFET をホールプローブとして用いる場合、ソースおよびドレ イン電極以外にホール電極をこれらに垂直に形成せるとともに、ホールプロ ーブの感度を向上するために素子形状を最適化する必要がある。このような 事情により既存のトランジスタに用いられている Si-MOSFET をそのまま流 用することは難しい。本研究では、Si-MOSFET についてホールプローブ専用 の設計を行い、試作した。

Si-MOSFET マイクロホールプローブの作製方法は、最先端の微細加工技術を用いることで 100 nm サイズの微細な素子を作ることも可能であるが、 このような技術は非常に高価で利用できない。ここでは、古くから行われている電気炉とウェットエッチングを用いる方法を用いて作製した。この装置は、 慶應義塾大学理工学部電子工学科の加工施設のものである。

加工プロセスは、フォトリソグラフィ技術、電気炉によるイオン熱拡散およ び熱酸化、フッ酸を用いた酸化シリコンのウェットエッチング、真空蒸着器を 用いた Al 蒸着とリン酸を用いたウェットエッチングの組み合わせによって行 った。

3.3.3 Si-MOSFET マイクロホールプローブのマスク設計

フォトリソグラフィ技術を用いる上で、まずマスクの設計が必要である。マ スクは、2.5 インチ四方のガラス基板に、Cr を蒸着して作製した。Si-MOSFET の作製では、4 回の感光を行い、それぞれ異なったマスクデザイ ンが必要である。すなわち、2 回目は、反転層の形成、2 回目は、ゲート酸 化膜、3 回目はオーミック電極のために酸化膜に空ける窓、4 回目は Al 電極 のパターン作製である。通常は4 枚の高価マスクを用意するが、試作ではマ スクサイズに余裕があることから、図 13 に示すように1 枚のマスクを 4 つ の部分に区切り、1 回ごとに 90 度ずつ回転して利用した。

それぞれの回のマスクパターンを図 14 から図 17 に示す。それぞれの図で 黒く塗りつぶされている部分に Cr が蒸着され、この部分がフォトリソグラ フィの行程で、レジストがカットされる部分となる。グレーの線は他の回の パターンとの重なり具合を示している。1つのホールプローブのサイズを 7.5 mm×7.5 mm とし 2×2 = 4 個のホールプローブを1つの基板上に作ら れる。それぞれについて1つの角の近傍に感磁領域が形成される。

3.3.4 Si-MOSFET マイクロホールプローブの製作プロセス

以下に Si-MOSFET マイクロホールプローブの作製プロセスを概説する。^{21,} 23)

Bをドープした P型 Si 基板(電気抵抗率 1 ~5 Ωcm, 基板厚さ 0.4 mm)
 を O₂ ガスを流した電気炉を用いて 1100 ℃で 4 時間半熱酸化させ膜厚 300 nm 程度の SiO₂ 層を基板表面に形成した。

- (2) ソース・ドレインおよびホール電極の下にできる反転層にイオンを注入 するために、この部分の SiO₂層を剥離する。まず、フォトリソグラフ ィを用いて SiO₂層を剥離する部分以外をレジストで保護した後、5パ ーセント HF 溶液中に Si 基板を 10 分浸し SiO₂を剥離した。
 - (3) 表面に付着したレジストを剥離して洗浄後、P イオンの入った半導体 用イオン注入液(東京応化 OCD)をスピナーによって表面にコートした。
 - (4) 次ぎにN₂ガスを流した電気炉(700 ℃~1000 ℃)に20分入れてOCD を焼結させ、Pイオンが高濃度に混じったSiO₂層を表面に形成させた。 このとき、わずかなPイオンが先述のSiO₂を剥離した層から内部のp-Si層に拡散しn-Si層が形成される。
 - (5) Si 基板を HF 溶液中に浸し表面の OCD を剥離し、N₂ガスを流した電 気炉(1100℃) 中で 20 分加熱し n-Si 層の P イオンを拡散させ、n-Si 層を拡大しソース・ドレイン・ホール電極下に n型-反転層を形成した。
 - (6) 平坦なゲート酸化膜を形成するため、ソース・ドレイン・ホール電極間の酸化膜を2回目のフォトリソグラフィと HF によるウェットエッチング行って剥離した。
 - (7) O₂ガスを流した電気炉(1100℃)中で 30 分加熱し、ゲート酸化膜を 形成した。
 - (8) 3回目のフォトリソグラフィと HF によるウェットエッチングを用いて、ソース・ドレインおよびホール電極の Al 配線とそれぞれの反転層を接合するため、反転層上の酸化膜層を一部剥離した。
 - (9) 電極用の Al を真空蒸着法で基板表面に 200 nm 程度形成した。
 - (10) 4 回目のフォトリソグラフィにより、電極を形成した。
 - (11) ヒーターで加熱したリン酸中に基板を浸し Al をウェットエッチング して電極を形成させた。
 - (12) 基板裏の全面に Al を蒸着し、N₂ガス中の電気炉(450 ℃)で 20 分間ア ニールを行い、Al 電極と反転層間をオーミック接合した。
 - (13) 基板をスクライバーで 7.5 mm×7.5 mm のサイズに切断した。
 - (14) プリント基板に Ag ペーストで接合した。
 - (15) 最後に Al ボンディングを行ってホールプローブを完成した。

以上の行程により図 18 の断面形状を持ったホールプローブができた。基板は、p-Si でソース・ドレインおよびホール電極下は、n-型の反転層になっ

ている。それらの間のゲート電極下は、p-型層になっており、ゲート電圧を 印加することにより、n-型の反転層にスイッチさせることができた。

3.3.5 試作した Si-MOSFET ホールプローブの作製結果

作製したホールプローブの顕微鏡写真を図 19 に示す。十字型をしたゲート電極のちょうど十字の交差した部分の下が感磁領域である。その外側にソース・ドレイン電極とホール電極が形成され、この下はn型の反転層となっている。 ゲート電極に正の電位を与えるとゲート酸化膜直下に電子ガスを誘起される。

+字型をしたゲート電極の線幅は 40 μ m で、このホールプローブの感磁領 域は 40 μ m×40 μ m である。この他、感磁領域サイズが 5 μ m×5 μ m, 10 μ m ×10 μ m, 20 μ m×20 μ m 及び 60 μ m×60 μ m のものを同時に作製した。顕微 鏡写真では、Al 電極の形状を確認することができるが、どの大きさのホール プローブもこれと同様にきれいな形状をもつ電極が製作できた。

n型の反転層の形は、写真では観察することはできないが、1回目のフォト リソグラフィ工程でエッチングをしたときの形状は、ソース・ドレインおよび ホール電極の外側にできた Si 基板の段差から予測することができる。ただし、 その後熱拡散、熱酸化工程を行ったため実際のn型反転層は、これより広がっ ているものと思われる。

ホール効果を測定してホールプローブの特性評価を行った。まず、ホールプ ローブのソース・ドレイン電極間、およびゲート電極間の抵抗のゲート電極依 存性を調べた。理想的には、ゲート電圧が0Vのとき、それぞれの電極間の抵 抗は無限大、閾電圧(数 V)以上の大きいゲート電圧を印加した場合には各々の 電極間の抵抗が零になることが望ましい。

作製した素子の中には、ゲート電圧 0 V のとき抵抗が小さい(数 kΩ以下)も のがあった。これは電極間がゲート電極の下以外で、n 型反転層同士が接合さ れているためである。これでは、ホールプローブとしての要求を満たさない。

閾電圧以上のゲート電圧を印加したとき抵抗が数 10 kΩ以上あるものがあった。これでは電流を流すことができないので、ホール効果を測定できない。こ
のような場合は、n型反転層が形成されていないこと、電極で Al 配線と反転 層間に酸化膜が形成されていてオーミック接合されていないことなどが考え られる。

実際に作製したホールプローブは、40および60 μm 角のものの歩留まりは 10%程度、10および20 μm 角のタイプでは条件を満たすものがなかった。これ は、ウェットエッチング、および P イオンの熱拡散の制御の難しさが原因で ある。

3.3.6 作製した Si-MOSFET マイクロホールプローブのホール効果測定

動作条件を満たしているホールプローブについて、ホール効果の測定を行った。まず、ホールプローブのゲート電極とドレイン電極間に 1 V の電圧を印加し、ホール電圧の外部磁場依存性について測定した。ここでは、ドレイン電極を接地し、ソース-ドレイン間電流は 10 μ A とした。結果を図 20 に示す。 -9.5 kA/m (-12 kOe)から+9.5 kA/m (+12 kOe)の間でホール電圧は印加磁場に比例し、ホール係数 0.0023 Ω /[A/m] (0.18 Ω /G)をもつことがわかった。このホール係数の値は GaAs/AlGaAs 2 次元電子系ホールプローブと同じオーダーである。

つぎに、ホール係数のゲート電圧依存性を測定した。その結果を図 21 に 示す。ゲート電圧の増加とともにホール係数が減少する。これは、誘起した 伝導チャネルの高さ方向の厚さが大きくなっていくことに起因する。これ から、ゲート電極を小さくして使用するのが良いが、ゲート電極が 1 V 以 下になると、試料抵抗は急増し、その結果、測定ノイズも増加する。

ホール係数の試料電流依存性を図 22 に示す。ゲート電圧は、3 V とした。 ホール係数は、10 µA で最大値を取る。電流が小さい場合は、ホール電圧も 小さくノイズに隠れて低下する。

一方、電流が大きい場合にホール係数が減少するのは、次のような理由が 考えられる。第一は「温度効果」である。電流を大きくするとホールプロー ブそのものが発熱し高温になり、その結果、ホール係数が低下する。第二は ソース・ドレイン間電圧の増加すると、ゲート電極の下以外の場所を流れる リーク電流が増加したことが考えられる。第三はソース・ドレイン間電圧が

- 22 -

71

増大してゲート電極下の電位分布が変化し、ホール角が減少しホール効果が 抑制されることである。^{21,27)}

以上から、Si-MOSFET ホールプローブは、ホールプローブとしての性能 を十分に発揮するには、適切なゲート電圧とソース・ドレイン電流が必要で ある。このホールプローブでは、ゲート電圧が1V,ソース・ドレイン電流 が10µAとしたが、この値はホールプローブごとに異なる。これは素子抵抗 と閾電圧が素子によって異なるためである。このようなバラツキが生じる原 因は素子作製時のエッチング、熱拡散、熱酸化の違いが、素子内の反転層形 状やイオン濃度に反映するものと思われる。

3.3.7 SHPM を用いた試作ホールプローブの評価

本ホールプローブを実際に SHPM 測定に用いた場合の磁気分解能について 調べた。測定方法は次の通りである。

SHPM に Si-MOSFET ホールプローブを取り付け測定できる状態にした。 試料は取り付けずに通常の走査を行う。このとき、ホールプローブが測定す る磁場 $H_{obs}H_{obs}$ は外部磁場の垂直成分 $H_{ext\perp}$ だけがホールプローブで検出さ れる。走査中に外部磁場 $H_{ext\perp}$ を2 値(0 or H_0)で切り替え、その SHPM 像を 測定した。同様の測定について H_0 を 573 A/m (7.2 Oe) ~ 57.3 A/m (0.72 Oe) の間で変化させ行った。測定結果を図 23 に示す。比較のため、Si-dope: GaAs ホールプローブを用いて測定した結果を一緒に示す。図からわかるように明 瞭な縦縞の濃淡が確認できることは、 $\Delta H = H_0$ の測定感度を持っていること を示す。

Si-MOSFET ホールプローブでは、GaAs ホールプローブに比べてより小 さい磁場の差でもストライプの濃淡を確認することができた。これは Si-MOSFET ホールプローブが SHPM 用ホールプローブとして有効であるこ とを示している。また、78.9 A/m (1 Oe)以下の磁場検出感度をもち、本研究 の目的とする強磁性体の磁区構造を観察するには十分な感度を達成してい る。

しかし、今回試作した素子の感磁領域は 40 µm×40 µm である。これは磁 区観察用として求められているサイズの 10 倍以上であり、今後素子の小型 化をはかる必要がある.そのためには、より高度なドライエッチングやイオン打ち込み、超高真空中での Al 配線形成などの微細加工技術を用いることで解決できるものと考える。

4. SHPM を用いた研究および SHPM の適用例

4.1 SmCo5 永久磁石の表面漏洩磁場像観察

SHPM の強磁場に強い特性を生かすことのできる永久磁石の表面磁気像観察を 行った。SmCo5永久磁石を用いた。大きさは、縦:3.5 mm×横:2.5 mmで厚 さが 100 µm のものである。実際に販売されている永久磁石の小片を研磨し最 終的に 10000 番のエミリーペーパーで表面を平坦にした。

ホールプローブは、GaAs/AlGaAs-2DEG 基板を用いた感磁領域 10 μm 四方 のものを用いた。このホール素子にはトンネル電極がないためホールプローブ と試料との間隔は目視で近づける方法をとった。ホール素子に流す電流は、3 μA とした。すべての測定は室温で行った。

走査は、50 μ m×50 μ mの範囲を 100×100 ポイントで SHPM モードにて行った。外部磁場は、0 A/m (0 kOe)から 1.2 MA/m (15 kOe)の間で変化させた。 測定結果 H_{obs} を図 24 に示す。図 24(a)から 24(e)までは、外部磁場を順に大きく していった時のものである。図 24 (f)は、一度 1.2 MA/m (15 kOe)まで外部磁場 を印加したのち、外部磁場をゼロにして再度測定したものである。画像の濃淡は、 それぞれホールプローブ素子が検出した磁場を示しており、+2.0 MA/m (+25 kOe)で黒、-4.0 kA/m (-0.5 kOe)で白、その間の磁場は、図中下で示す濃淡で表 されている。

図 24 の SHPM 像は、外部磁場が増加するにつれて画像全体が黒くなっている。これは、試料から漏れ出た磁場よりも、主に外部磁場成分を測定したことに起因している。画像は、ホール素子が測定した磁場Hobsの強度を示すが、Hobsは次式のように表される。

$$H_{\rm obs} = H_{\rm sample\perp} + H_{\rm ext} \tag{4}$$

- 24 -

ここで、 $H_{sample1}$ は試料からの漏れ磁場のホール素子の位置での垂直成分、 H_{ext} は 外部磁場である。 $H_{sample1}$ は強いところでもたかだか 0.4 MA/m (5 kOe)程度に しかならないのに対し、 H_{ext} は最大で 1.2 MA/m (15 kOe)にもなる。このため、 測定画像のコントラストはほとんど H_{ext} に依存してしまう。そこで、 H_{ext} を減 算し、 $H_{sample1}$ のみを取り出した。この図を図 25 に示す。コントラストを最適 化し、図 25 中の黒を 400 kA/m (5 kOe)、白を-400 kA/m (-5 kOe)とした。こ れにより、磁区の境が明瞭になっている。

すべての画像で、白い部分より黒い部分の領域が広く、全体として正方向に 磁化していることがわかる。この試料の試料振動型磁力計を用いた磁化曲線を 図 26 に示す。外部磁場の印加方向および、最大印加磁場は SHPM での測定 と同じである。1.2 MA/m (15 kOe)の磁場では面直方向に磁化が飽和しておら ず、マイナーループになりヒステリシス全体が上にシフトしていることがわか る。0~1.2 MA/m (0~15 kOe)の外部磁場では、平均して上方向の自発磁化 をつねに持っていることがわかる。これは、SHPM の測定結果が黒い部分が 多くなっていることと一致している。

磁場ごとの測定結果を比較すると、図 25(a)で右下に見られる白い三角形の 模様は外部磁場の印加とともに、図 25(b)、(c)では、白い領域が減少し、図 25(d) では、ほとんど反転し黒くなっている。これは、試料の磁化反転過程を示して いると考えられる。

また、走査位置精度については、外部磁場の増加とともに画像が全体的に左 にずれていくことがこの三角形の振る舞いからわかる。図 25(a)で(ア)で印を つけた領域は、図 25(c)では(イ)の場所へ移動し、図 25(d)の状態では(ウ)の場 所まで移動している。このずれは、三角形の外形が変化してないこと、画像全 体が一方向に移動していることなどから、磁区が移動しているのではなく、走 査ステージが外部磁場により移動してしまったことを示している。一方、三角 形の大きさは変化していない。これは、ピエゾ素子の駆動量が、外部磁場によ らず一定であることを示し、走査量が変化していないことがわかった。

この測定結果をふまえ、外部磁場によって走査ステージが移動する問題の解 決を試みた。まず、走査ステージの載るスライドベアリングの位置を、磁極間 隙中心を基準として対称な位置になるように調節した。つぎに走査ステージを 駆動部側に引きつけるバネの力を調節した。駆動部とクライオスタッドを固定 する台座の剛性を強くし、外部磁場によって走査ステージと駆動部が異なった 方向に力を受けたとき、動力伝達棒が歪まないようにした。これらの改良によ り、外部磁場による走査ステージの移動は格段に縮小した。後に示す実験結果 と比較すると良くわかる。 本測定に用いたホールプローブの感磁領域サイズ(10 µm × 10 µm)は、 走査ステップ(0.5 µm × 0.5 µm)と比較して非常に大きい。磁気像の空間分解 能は、ホール素子サイズ程度となることが予想される。実際の測定画像は測定 ポイントの密度と比較して大きくぼやけており、ホール素子の感磁領域が大き いことが原因の1つである。また、測定画像がぼやける他の原因として試料と ホール素子の距離がある。試料からの磁場は、表面から離れると垂直方向から 傾くため、感度が急激に落ちてしまう。今回用いたホール素子は比較的大きい ため、目視で近づけても素子のもつ分解能を発揮させることができたが、より 小さい感磁領域のホールプローブでは、STM 法を用いて試料と素子距離を制 御する必要があると考えられる。

4.2 Sm₂Co₁₇ 永久磁石の表面漏洩磁場像の低温観察

次に Sm₂Co₁₇ 永久磁石について、30 K から 200 K の低温で測定を行った。こ の結果を図 27 に示す。すべての温度領域で同じ大きさの磁区の反転を見るこ とができ、試料の温度変化があっても走査範囲が変化しないことが見て取れる。 また、磁区のコントラスト、明瞭さも変化がなく SHPM の測定感度の温度特 性も無視できる範囲であることがわかる。低温にすると磁気像が左上に若干移 動していく様子が見られるが、わずかな量であり、試料に傷などのマークを入 れておけば補正できるので使用上問題ないと考える。

4.3Sm2Co17 永久磁石の表面磁区構造観察

SHPM を用いて Sm₂Co₁₇ 永久磁石の表面磁気特性について、詳細に調べた。試料は、縦 2 mm、横 2 mm、厚さ 100 µm の薄板形状のものである。表面は、 10000 番のエミリーペーパーで研磨し平坦にした。磁化容易軸は、面直方向を 向いており、面直方向に±1.2 MA/m (15 kOe)の外部磁場を印加した場合の磁 化曲線は、図 28(a)のようになる。SmCo₅に比べて飽和磁場は小さく(図 26)、 また 1.2 MA/m (15 kOe)でほぼ飽和していることがわかる。

感磁領域 5 μm の Si-doped GaAs 基板に作成したホールプローブを用いて SHPM 測定を行った。測定は、STM モードを用いて 50 μm×50 μm の領域を 100×100 ポイントで走査した。測定条件は、室温、常圧である。外部磁場は、 -1.28 MA/m (-16 kOe)から+1.28 MA/m (+16 kOe)の間で挿引した。

図 28 の領域 II について SHPM 観察を行い、 $H_{sample \perp}$ について磁化過程、および減磁過程における表面磁気像を得た。その結果を図 29 に示す。

磁化過程を観察するために外部磁場を変化させて、検出された表面漏洩磁 場を等高線図としてしめしている。図 29(a)は、あらかじめ外部磁場を-1.28 MA/m まで印加した後、無磁場にして測定した結果である。まず、図 29(a)の 初期状態からの増磁過程に注目しよう。初期状態では、全体的に下向きの表面 漏洩磁場分布とそれに相反する表面漏洩磁場分布の領域が存在していること がわかる残留磁化状態となっている。外部磁場を増大させていくと、図 29(a) でハッキリと現れている左下の等高線領域(赤色)が小さくなり、外部磁場が 図 29(e) 0.64 MA/m の時にほぼ消失し、観察領域全体にほぼ一様な表面漏洩 磁場分布となっていることがわかる。その後、さらに増磁させていくと図 29(f) から図 29(i)にかけて右上の領域から磁場方向と同方向の向きの成分の領域が 拡大していく様子がわかる。これは磁場増大による磁区拡大によるものと推 察できる。一方、それとは対照的に左下の領域は逆方向の向きの成分を持った 表面漏洩磁場分布領域がその強度を成長させている様子がわかる。図 29(i)の 試料全体が飽和している状態においても逆方向の成分が残留していることか ら、内在ピン止め構造による永久磁化種の存在を示しているものと考えられ る。^{29,30)}

図 29(i)から図 29(m)は、減磁過程での表面漏洩磁場分布像である。この減 磁過程図 29(i)→図 29(m)に注目すると、表面漏洩磁場の等高線は無磁場状態 (m)になるまでほとんど変化していない。これは、一度形成された磁区構造が そのまま維持されて磁化過程にヒステリシスがあることに対応し、保磁力発 生の原因になっている。残留磁化状態図 29(m)は、初期条件の残留磁化状態 図 29(a)と比較すると、等高線の分布形状がほぼ同じでカラーマップのコント ラストが逆転した像をしている。多少、細部が異なる点は、増磁・減磁過に よる残留磁化状態が異なることを示しており、磁壁が空間的に非対称なポテ ンシャル中を移動した結果と考えられる。

4.4 Sm₂Co₁₇ 永久磁石の局所磁化過程

(1) 磁化反転の核となる場所の磁化過程

より細かい領域の磁化過程について考える。図 30 に示す図は、図 28(b)における試料の観察領域 I について、外部磁場が 6.4 MA/m であるときの表面漏 洩磁場観察像である。この図の中で特徴的な振る舞いをした測定点(ア)、

(イ)、について外部磁場による磁化の変化を調べた。図 31 にそれぞれの 測定点における磁化の外部磁場依存性を示す。測定点(ア)では、磁化反転 がほぼゼロ磁場で起こっている。一方、測定点(イ)では、外部磁場の大き さが 0.2 MA/m (2.5 kOe)程度で磁化反転している。どちらも、測定領域全 体の保磁力 0.48 MA/m (6 kOe)と比べて小さい。

測定点(ア)、(イ)の違いは、反転磁場だけにとどまらない。特に強磁場 になったとき、振る舞いが大きく異なる。(イ)では、単調に磁化が増加し 飽和する測定領域全体と同じような磁化過程を進むのに対し、(ア)は急激 に磁化を増加した後、強磁場では反対に磁化を減少させている。この現象は、 画像から(ア)の島は(イ)に吸収されてなくなったように見えた。減磁過 程に於いては、磁化過程より小さい磁化のまま減少している。重要なことは、 磁化過程の磁化曲線より減磁過程の磁化曲線の方が下をとおる、つまり同 じ外部磁場で磁化が小さくなっているのである。ヒステリシスループが反 対になっており、この位置で磁化過程中に、磁気エネルギーが蓄えられない ことを示している。(ア)の微小領域だけを見ると、強磁性体としての性質 を失っているように思われる。

(ア),(イ)点のような磁化反転の発生する場所は、保磁力が小さく、こ れは試料の欠陥や表面形状が影響していると考えられる。さらに、(ア)点 では、外部磁場がない残留磁場ですでに反転している。これは、試料が作る 内部磁場によって(ア)点に外部磁場とは反対の磁場が働いているものと考 えられる。また、特に保磁力が小さく、強磁場を印加した場合、低い磁場で 磁化反転したにもかかわらず、その他の場所が磁化反転すると、それらが作 る内部磁場の影響で磁化を減らされてしまうことを示している。定性的に は、弱い磁石を外部磁場中におくと、磁化の向きが揃うが、これに強い磁石 を近づけると、強い磁石が外部磁場を向き、弱い磁石は強い磁石から出る磁 束と外部磁場の和の方向に傾き外部磁場方向の磁化を減らすことと同じで あると考えられる。

(2) 外部磁場の正負により異なる振る舞いをする点

測定領域 I の結果について、磁化過程の一部を図 32 に示す。図 32(a)と図 32(b)では、試料全体では飽和磁化状態にあるが、局所的な表面漏洩磁場像 では外部磁場の方向と逆向きの成分を持った領域がはっきりと出現してい ることがわかる。さらに、図 32(a)と図 32(b)の差分を図 33(a)に示す。同じ く、図 32(c)と図 32(d)の差分を図 33(b)に示す。これらの図で、黄緑色の部 分は、磁場を正方向に印加した場合も、負方向に印加した場合も、方向が反 対で同じ大きさの磁化を示した所で、磁化過程が外部磁場に対して対称的 な振る舞いをすることを意味する。

ほとんどの領域は、対称的になるが、一方で、右下に、赤と青の島が2つ 見られる。赤は、負方向に印加した時の方が反転しにくいことを示している。 一方、青は、正方向に印加した時に反転しにくいことを示している。この場 所は、常に上方向または、下方向にバイアス磁場が印加されていると考えら れる。特に、強磁場を印加しても、一方の方向にしか磁化が向かないことを 示し、このとき相当大きなバイアス磁場が外部磁場とは反対に働いている と考えられる。しかし、無磁場ではそれほど大きな磁場をこの異常な場所で 観測できていない。つまり、外部磁場が印加され試料が磁化されることによ って、これら異常点にバイアス磁場が印加されると考えられる。さらに興味 深い点は、このような島は、赤・青対になって存在していることである。こ のような、青の島と赤の島は、お互いに反対方向を向き、反強磁性的な結合 をして外部磁場を受けても反転しないようになっていることが考えられる。

試料が磁化反転過程中となる低い外部磁場下でも、これほど明瞭ではないが、図 32(b)に示すように赤と青の島のペアを複数確認することができる。 とくに、磁化反転の核の近くで見られる。しかし、核の位置とは異なっている。これは、磁化反転の核が上向きと下向きで若干異なった場所で発生していることを示している。

4.5 磁化反転機構

これらの表面磁気像の測定結果は、Sm₂Co₁₇永久磁石の磁化反転過程が場 所により大きく異なることを示している。測定領域 50 µm 四方で考えると ほとんど試料全体の磁化過程と一致していると考えられる。一方、測定点 ごとの磁化過程では、試料全体とはまったく違った磁化過程を示す。この 測定点とは、ホールプローブの空間分解能である 5 µm 四方と考えられ、 50 µm と 5 µm の間に大きな差があることになる。表面磁気像の結果をみ ると、1 つの磁区の大きさがこの間に存在することがわかる。つまり、測 定点の局所磁化過程は、1 つの磁区の磁化過程を示すものと考えられる。

Sm₂Co₁₇の磁化反転は、外部磁場方向を向いた小さい磁区(核)が発生 し、これが外部磁場の増加とともに拡大し、さらに同方向の磁区同士が合 わさることで大きな1つの磁区に成長し試料全体でおおきな磁化を持つ ことがわかった。試料が飽和する外部磁場でも、小さい領域を調べると至 るところに磁化が外部磁場の方向を向いてない点が存在する。この場所の 周囲では、磁化は様々な特徴的な振る舞いを示す。磁化反転の核発生場所 となる。周辺に比べて大きな磁化を持つ。反対の方向に向き続ける磁区を 対に持っている。 この異常な振る舞いをする磁区は、強磁場中で大きくなる。一方で、無磁場に戻すと小さくなってほとんどわからない。これは、空間分解能が不 十分であるためであると考えられる。より詳しい議論をするためには、さ らに小さい空間分解能で調べる必要がある。

磁化反転の核発生する場所は、磁化反転が低い磁場で起こり保磁力が小 さいと考えられる。これは、1つには実際に試料の欠陥などで保磁力が小 さくなっていることがある。しかし、減磁過程ですでに核発生する場所も ある。このことは、試料が持つ磁化により、発生場所にバイアス磁場が印 加されている事が考えられる。1つの原因としては、核発生場所の周囲に、 外部磁場によらず、1つの方向を向いた磁区のペアがあることが確認され ていることから、このペアの磁区がバイアス磁場として働くことが考えら れる。保磁力が小さい場所が反転するが、その周囲には、保磁力が非常に 大きな磁化反転しない場所が存在していることを示唆しているのかもし れない。

残念ながら、本測定では、空間分解能の限界からこれらの保磁力が非常 に大きな場所を無磁場で確認できなかった。しかし、これらの保磁力の非 常に大きな場所は、強磁場下でその大きさを拡大し表面磁気像に明らかな 異常な点を示した。これは、外部磁場印加下で、表面磁気像を観察するこ との意義とその重要性を強く示すものである。また、開発した SHPM が この問題を解決するのに非常に適した測定装置であることを示している。 残念ながら現在の空間分解能では、磁区の外形を知ることはできるが、境 界やさらに異常な振る舞いをしている磁区の残留磁場中での状態を知る ことはできなかった。

4.6 その他の磁区観察について

SHPM の磁気記録や超伝導渦構造の観察については、磁気イメージング・ハ ンドブック²³⁾やその他文献等に詳細が示されているので、ご興味のある方は ぜひ参考にしていただきたい。

5. SHPM のまとめと展望について

ここでは、SHPM 装置開発に関する技術的な点や装置評価について述べた。 SHPM は磁場検出の感度では SQUID(Superconducting quantum interference device)には及ばないが、冷媒を必要としないため経済性や操作性に優れ、さら に接触・非接触どちらの測定でも可能なため、汎用性を持ち合わせている。特に 非破壊検査手法として注目されているほか、強磁場印加中の微小空間における 磁区観察という永久磁石研究で必要不可欠とされる研究にもっとも適している 顕微鏡の一つであると考えられる。開発当時から現在まで、SHPM が市販され るまでになり、物性研究における一つのツールとなり始めている点でも、今後の 基礎物理や材料科学の分野での活用が期待される顕微鏡であると考えられる。

参考文献

1) F. Bitter, *Phys. Rev.* **38**, 1903 (1931), *ibid.* **41**, 507 (1932).

2) L. V. Hamos and P. A. Thiessen, Z. Phys. 71, 442 (1932).

3) W. C. Elmore, *Phys. Rev.* **51**, 982 (1937), *ibid.* **53**, 757 (1938), *ibid.* **54**, 309 (1938), *ibid.* **62**, 486 (1942).

4) H. J. Williams, R. M. Bozorth and W. Shockley, Phys. Rev. 75, 155 (1949).

5) S. Chikazumi and K. Suzuki, J. Phys. Soc. Japan 10, 523 (1955).

6) Y. Martin and H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* 50, 1455 (1987), Y. Martin, D. Rugar, and H. K. Wickramasingbe, *Appl. Phys. Lett.* 52, 244 (1988).

7) J. R. Kirtly, M. B. Ketchen, K. G. Stawiasz, J. Z. Sun, W. J. Gallagher, S. H. Blanton and S. J. Wind, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1138 (1995).

8) M. A. Itzler, J. A. Simmons, and P. M. Chaikin, *Bull. Am. Phys. Sot.* **36**, 724 (1991)

- 9) A. M. Chang, H. D. Hallen, L. Harriot, H. F. Hess, H. L. Loa, J. Kao, R. E. Miller, and T. Y. Chang: *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 1974 (1992).
- 10) A. Oral, S. J. Bending and M. Henini: Appl. Phys. Lett., 69, 1324 (1996).
- 11) A. Oral, J. C. Barnard, S. J. Bending, I. I. Kaya, S. Ooi, T. Tamegai and M. Henini: *Phys. Rev. Lett.*, **16**, 3610 (1998).
- 12) A. Oral, J. C. Barnard, S. J. Bending, S. Ooi, H. Taoka, T. Tamegai and M. Henini:

Phys. Rev., **B 56**, R14295 (1997).

- 13) J. Siegel, J. Witt, N. Venturi and S. Field: Rev. Sci. Instrum., 66, 2520 (1995).
- 14) A. Oral, S. J. Bending and M. Henini: Appl. Phys. Lett., 69, 1324 (1996).
- 15) T. Fukumura, H. Sugawara, T. Hasegawa, K. Tanaka, H. Sakaki, T. Kimura and Y. Tokura: *Science*, 284, 1969 (1999).
- 16) A. Oral, M. Kaval, M. Dede, H. Masuda, A. Okamoto, I. Shibasaki, and A. Sandhu: *IEEE Trans. Magn.*, 38, 2438 (2002).
- 17) A. Oota, T. Ito, K. Kawano, D. Sugiyama and H. Aoki: Rev. Sci. Inst., 70, 184 (1999).
- 18) M. Shimizu, E. Saitoh, H. Miyajima and H. Masuda: J. Magn. Magn. Mater., 282, 369, (2004); 清水正義、博士論文(慶應義塾大学)、(2004)
- 19) A. Sandhu, N. Iida, H. Masuda, A. Oral and S. J. Beding: J. Magn. Magn. Mater., 242-245, 1249 (2002).
- 20) A. Sandhu, K. Kurosawa, M. Dede and A. Oral: J. J. Appl. Phys., 43, 777, (2004).
- 21) A. Yamaguchi, H. Saito, M. Shimizu, H. Miyajima, S. Matsumoto, Y. Nakamura, and A. Hirohata: *Rev. Sci. Inst.*, **79**, 083703 (2008).
- 22) http://www.attocube.com/nanoSCOPY/fundamentalsSHPM.html
- 23)日本磁気学会編:『磁気イメージング・ハンドブック』,共立出版,(2010年)
- 24) H. Lippmann and F. Kuhrt: Z. Naturforsch., A 13, 474 (1958).
- 25) J. Haeusler: Archiv. für Electrotechnik., 52, 11 (1968).
- 26) J. Haeusler and H. J. Lippmann: Solid-State Electronics, 11, 173(1968).
- 27) S. M. ジィー 著:『半導体デバイス基礎理論とプロセス技術 第2版』, 産業図書(2004年).
- 28)データシートサーチシステム <u>http://www.alldatasheet.jp/</u>
- 29) 近角 聰信:『強磁性体の物理(上・下)』, 裳華房(1978年, 1984年). 30) S. Chikazumi: J. Magn. Magn. Mater., **54-57**, 1551 (2004).



図1 ホール電圧測定概念図.

表1 開発した走査型ホ	ールプローフ	゙顕微鏡の仕	禄
-------------	--------	--------	---

	最大印加磁場	±1.28 MA/m (16 kOe)	
	磁極間隙	50 mm	
電磁石	磁極直径	$70 \text{ mm } \phi$	
	最大電流	50 A	
	最大電圧	55 V	
	冷却方式	間接冷却方式	
	重量	1.3 t	
	形式	バイポーラ式定電流電源	
	出力電流	± 50 A	
	出力電圧	±65 V	
励磁用電源	出力安定度	1×10^{-3}	
	走查切換	Remote/Local 切換式	
	電源入力	3相 AC 200 V 50/60 Hz	
	定格電流	18.5 A/相	
	防振方式	垂直方向:空気バネ	
		水平方向:ユニバーサルシステム	
	制振方式	垂直方向:エアーダンピング	
		水平方向:ゴムダンピング	
防振台	水平維持方式	メカニカルオートレベルセンサー	
	エアー供給方式	自動供給方式	
	必要空気圧	3~7 kg/cm ²	
	搭載可能重量	1.5 t	
	重量	1.2 t	
	循環方式	密閉系向循環	
	使用周囲温度範囲	5∼35 °C	
冷却水循環装置	温度調整範囲	-10~35 °C	
	温度調整精度	± 2.0 °C	
	冷却能力	3000Wat 液温 20 °C	
	電源入力	単相 AC 200 V 50/60 Hz	
	定格電流・電力	10 A • 2.0 kVA	



図 2(a) ホールプローブの先端形状概念図.利用時は、反対向きにして、プロ ーブ先端を試料に最接近させる.(b) 走査型ホール顕微鏡装置概念図.

(a)





図3 (a)走査型ホールプローブ顕微鏡の全体写真図. (b)装置模式図.



図4 外部磁場印加用電磁石の設置方法.上下の青い部分の内側にコイルおよ び冷却配管あり、その中間に鉛直方向に磁場を印加できる.



図5 電磁石に取り付けられた走査機構部を移動するスライドレール機構.



図6 走査機構部および試料冷却部の詳細.



図7制御部の回路図.

(a)

(b)



ホールプローブ取付台座



Z軸ピエゾ素子 ホールプローブ取付位置

図 8(a)ホールプローブを取り付けるプリント基板(特別設計).右のホールプロ ーブ側はボンディングにより接合し、左の丸い電極郡が接点となる.(b)ホール プローブの取り付け台座(走査機構側).



図9x,y軸ピエゾ素子の制御フローチャート.



図 10 トンネル電流検出動作のフローチャート.



図 11 測定系のフローチャート.

表2 ホール素子の種類

基板	電子移動度 (cm²/V/s)	利点	欠点	
InSb	78000	移動度が大きい	温度依存性が大きい	
GaAs	8500	温度依存性が小さい	機械的に脆い	
Si	1900	機械的強度に優れる	移動度が小さい	



図 12 市販ホール素子の温度依存性⁽¹²⁾. GaAs(HW-106C)は InSb タイプ(HW-101A)よりも温度特性に優れる.



図 13 Crマスクの設計図(全体図). 基板を4分割して4回分に分けている.利 用時に90度ずつ回転して用いる. それぞれ、矢印の方向を上向きとしてマスク アライナにセットする. 1回に4つのホール素子を作成できる.



図 14 1 層目のマスクパターン.上図がホール素子1 つ分のパターン.下図 は、右下1.2 mm 角を拡大したもの.(数値は、10 および 20 µm の感磁領域の パターンのもの)



図 15 2 層目のマスクパターン.上図がホール素子1 つ分のパターン.下図は、右下1.2 mm 角を拡大したもの.(数値は、10 および 20 µm の感磁領域の パターンのもの)



図 16 3 層目のマスクパターン.上図がホール素子1 つ分のパターン.下図は、右下1.2 mm 角を拡大したもの.(数値は、10 および 20 µm の感磁領域の パターンのもの)



図 17 4 層目のマスクパターン.上図がホール素子 1 つ分のパターン.下図は、右下 1.2 mm 角を拡大したもの.(数値は、20 µm の感磁領域のパターンのもの)



図18 Si-MOSFET ホール素子の断面形状.



図 19 SI-MOSFET ホール素子の顕微鏡写真.



図 20 作製した図 19 の Si-MOSFET ホール素子のホール電圧の外部磁場依存 性. ゲート電圧は、V_G=1 V, 電流は *I*_{SD}=10 µA である.



図 21 作製した図 19 の Si-MOSFET ホール素子のホール係数のゲート電圧依存 性. ソース・ドレイン電流は、10 µA である.



図 22 作製した図 19 の Si-MOSFET ホール素子のホール係数のソースードレイン電流依存性. ゲート電圧は、3 V である.

<i>∆ H</i> (Oe)	7.2	3.6	2.6	1.44	0.72
Si- MOSFET (□40 μm)					
GaAs (⊡5 μm)					

図 23 作製した図 19 の Si-MOSFET ホール素子と GaAs ホール素子の磁場感度の比較.



図 24 SmCos 永久磁石の走査型ホールプローブ顕微鏡像(SHPM 像).


図 25 SmCos 永久磁石の表面磁場像.



図 26 SmCo5 永久磁石の磁化曲線.



図 27 Sm2Co17 永久磁石の表面磁場像の温度・磁場依存性.



図 28 (a) Sm₂Co₁₇ 永久磁石の磁化曲線. 外部磁場は試料表面に垂直に印加した. (b) SHPM 観察領域の模式図.



図 29 Sm₂Co₁₇ 永久磁石の領域 II における表面磁場像.外部磁場成分をさし引いた像で、一旦外部磁場を-1.28 MA/m (-16 kOe)まで印加した後、0 MA/m (0 kOe)に戻し(a)から順に外部磁場を増やしながら測定を行った.



図 30 測定領域 A の表面磁場像. 外部磁場が 0.64 MA/m (8 kOe)の時の図. 島 が形成された測定点 (ア)、(イ) を示す.



図 31 図 30 における測定点(ア)および(イ)の磁化の外部磁場依存性. 領域A全体の磁化を同時に示した.



図 32 試料観察領域 I (図 28) における外部磁場印加時 (a) -1.28 MA/m, (b) +1.28 MA/m, (c) -0.64 MA/m, (d) +0.64 MA/m における表面漏洩磁場像.

(a)
$$|H_{ext}| = 1.28 \text{ MA/m}$$



(b) $|H_{ext}| = 0.64 \text{ MA/m}$



図 33 正方向と負方向に磁場を印加した場合の表面磁場像の差分。(a)は、1.28 MA/m(16 kOe) (図 32(b)) と-1.28 MA/m(16 kOe) (図 32(a))の比較. (b)は、 0.64 MA/m(8 kOe) (図 32(d)) と-0.64 MA/m(-8 kOe) (図 32(c)) との比較.

スピン偏極 LEEM

越川孝範¹⁾、鈴木雅彦¹⁾、安江常夫¹⁾、E. Bauer²⁾、中西彊³⁾*、金秀光⁴)、 竹田美和⁵⁾

1. 大阪電気通信大学 エレクトロニクス基礎研究所

2. Dept. of Physics and Astronomy, Arizona State Univ.

3. 名古屋大学 理学研究科

4. 名古屋大学 工学研究科

5. 科学技術交流財団シンクロトロン光センター

低エネルギー電子顕微鏡(LEEM)・光電子顕微鏡(PEEM)は表面の現象を実時間かつ多 機能性で観察する表面電子顕微鏡として注目を集めている。ここでは主にLEEMに関してそ の光学系、像形成過程ならびにLEEMにスピン偏極電子ビームを照射による、磁区観察の機 能向上のための開発ならびに得られた結果についてその「ノウハウ」を含めて状況を報告 する。スピン偏極電子ビームを用いた磁区コントラストは弱いために実時間観察を実現し ようとすると、電子銃の高輝度化、高スピン偏極化、電子源(フォトカソード)の長寿命 化を実現しなければならない。そのため、励起用レーザ光の背面入射による高輝度化とそ れに伴う歪み超格子フォトカソードの開発および偏極度の向上、極高真空(XHV)の実現と 電子光学系の新しいデザインによる長寿命化を達成した。また、開発したスピン偏極 LEEM (SPLEEM)を用いてスピントロニクス薄膜材料として期待される[CoNi]y 多層膜の詳細な観 察を行った。これらの一連の成果につき述べる。

Key words: low energy electron microscopy, LEEM, spin-polarized low energy electron microscopy, SPLEEM, spintronics, magnetic domain, strained super-lattice

1. はじめに

低エネルギー電子顕微鏡(LEEM)ならびに光電子顕微鏡(PEEM)は従来から広く使用さ れてきた透過型電子顕微鏡(TEM)や走査型電子顕微鏡(SEM)とは異なる機能を持つため に表面に関する基礎的な研究分野は勿論、電子源のテスターならびに半導体テスターとし ても実用化されようとしている1-9)。日本でも開発が行われてきたが10.11)、低エネル ギー電子顕微鏡(LEEM)が実用的な形で世に現れたのは1985年のTeliepsとBauerの長年 にわたる開発の結果である12,13)。そのために比較的新しい表面電子顕微鏡だと思われて いるが、LEEM/PEEMの原型ともいうべきEmission microscope(EM)またはCathode lens microscopeと呼ばれた電子顕微鏡の開発が1930年代の初期から行われてきており非常に長 い開発の歴史を持っている14)。しかし、低エネルギーの電子を信号源にするために表面の 汚染に敏感であり表面現象を観察しようとすると超高真空が必要になる。しかし多くの電 子光学系を組み込んだ電子顕微鏡を超高真空にするということは簡単ではなかった。24年 間の開発期間を経たのちに完成した Bauer グループの LEEM 開発の成功を待つ必要があった 12,13)。Bauer グループにより完成された LEEM の写真を Fig. 1 に示す。光電子顕微鏡 (PEEM) は入射ビームとして電子ではなく紫外光やレーザ光あるいは X 線 (放射光)を用いる。PEEM の機能だけを持った顕微鏡も開発されているが、LEEM と PEEM の機能が一体になった顕微鏡 も多く普及している。それ以外にも原子、イオン、He 等の準安定原子 (ごく表面の情報を 得ることが可能)等を入射ビームにすることも可能である。このように入射ビームに多様 性があるために多機能性があり、個々の実験室ではもちろん放射光施設で放射光を光源と する新しい顕微鏡としても多く使用されている 1-8)。将来は自由電子レーザを光源として 利用することも当然検討されている。

LEEM/PEEM の特徴をあげる。

- (1) 低エネルギー(数 eV から数 100eV)の電子を信号源として使用するために表面の 現象を観察できる。
- (2) 投影型の顕微鏡であるために像の取得時間が比較的早く実時間観察が可能である。
- (3) 試料正面から反射した電子の像を得るために像に寸詰まりがない。
- (4) すでに述べたように電子以外の入射ビームを用いることが可能で多様な情報を得る ことができる多機能表面電子顕微鏡として使用できる。

LEEM/PEEMにより得られる多彩な情報を示すものとして入射ビームと信号により種々の 名称がつけられている。Fig.2にその多彩な顕微鏡の一端を示す 1)。

また多機能性についてその例を記す。紫外光を入射光として用いた場合、PEEMのコント ラストは主に表面の局所的な仕事関数の変化により生じる。実際には表面の局所的な電子 状態密度の変化も大きな影響を与える。X線を用いて光電子のエネルギー分光を行うと、 高分解能のXPS(X線光電子分光)顕微鏡として使用できる(XPEEM)。通常輝度が高いX 線を使用できる放射光を利用する。そうすると実験室で使用されているX線源を使用する 通常のXPSでは数μm程度の分解能を得ることやっとだが、この方法を使うといとも簡単に 20-30nm オーダの高分解能 XPS として使用できる。

2. LEEM の光学系と像形成過程

SPLEEMの像形成にとっても重要なので、LEEMの光学系とLEEMの像形成について述べる。

2.1 LEEM光学系

Fig. 3にLEEMの顕微鏡像と回折像を得る場合の概略図を示す15)。試料と対物レンズの間には数-20kV程度の高電圧を印加しており、これが対物レンズの役割の一部を果たしている。これがカソードレンズであり、初期のころは顕微鏡をカソードレンズマイクロスコープと呼ぶ所以である。最近ではほとんど使わないが、この顕微鏡をエミッションマイクロスコープという呼び方をしていたこともある。対物レンズには一般的には電場と磁場を組

み合わせた光学系を用いることが多い。収差を軽減する効果がある。対物レンズの後焦点 面には低速電子回折パターン形成され、その回折パターンの回折スポットを用いてLEEM像 を結像させる。透過電子顕微鏡と基本的な原理は同じである。対物レンズの倍率は大きく ないので、拡大した像は結像レンズ系で拡大して像やパターンを得る。

Fig.4 に電子光学系の一例を示す16)。右上にある電子源から放出された電子は数~ 20keV程度に加速され、照射電子光学系を通って中央にあるビームセパレータに達する。 LEEMでは照射電子光学系からの入射電子を試料に導き、試料で散乱された電子を結像電 子光学系に導くため、両者を分離する光学系が必要とされる。この役割を担うのがビーム セパレータである。ここでは、電子ビームを60°偏向するものを描いているが、90°偏向 するタイプなど、いくつかの種類がある。ビームセパレータから出た電子ビームは、対物 レンズを通って平行ビームとして試料に垂直に入射する。このとき、入射電子は対物レン ズと試料の間で急激に減速される。試料で弾性散乱された電子は、対物レンズとの間の加 速電場により、加速され対物レンズ、ビームセパレータを通って結像電子光学系へと導か れる。結像電子光学系の途中には、対物レンズの後焦点面に形成された回折パターンが投 影されるところがある。ここに絞り(コントラストアパーチャと呼ばれる)を挿入して、 結像に用いる回折スポットのみを透過させる。そして、拡大投影された像がマイクロチャ ンネルプレート(MCP) で増幅され, 蛍光スクリーン上に映し出される。このとき, (00) スポットを拡大すれば明視野像が、回折スポットを拡大すれば暗視野像が得られる。この ようにして得られるのがLEEM 像である15,16)。この時の入射エネルギーは数~数+eV であるが,エネルギーが0eVに近づくと,電子は試料の内部には侵入せず表面直上で鏡面 的に反射されるようになる。この反射された電子を結像すると,ミラー像が得られる。ミ ラー像は表面の凹凸等によって生じる電界分布を反映したものとなる。なお、PEEMでは 試料に矢印で示したように光を照射する。光源として放射光のような高輝度X線を用いると 内殻励起によって放出される光電子を結像することができる(XPEEMと呼ばれる)。この とき、結像電子光学系の途中にエネルギーフィルターを挿入して、光電子のエネルギー分 析をすれば,化学状態を反映した像が得られる。このような分光型のLEEM/PEEM装置は SPELEEM (Spectroscopic PhotoEmission and Low Energy Electron Microscope) と呼 ばれる1-6)。

照射電子光学系に絞りを入れて試料表面上で電子ビームを照射する領域を制限する,あ るいは像面上で制限視野絞りを入れると,局所領域からのLEEDパターンを観察することが できる。現在,試料表面上の0.05µm¢またはそれ以下の領域からのLEEDパターンを得るこ とができる。LEEMで欠陥等が含まれていない均一な領域を選んでFV曲線の測定を行えば, より信頼性の高い構造決定を行うことができる17)。また,エネルギーを変えながらLEEM 像を取得し,結像に用いた回折スポットのFV曲線をLEEM像中の任意の場所から得ること もできる18)。LEEDでは局所構造のみならず,表面上に形成される三次元的な島のファセ ット構造の解析も行うことができる4)。そこでは,LEEMの電子光学系を用いて観察される LEEDパターンの特徴をうまく利用している。LEEMの電子光学系を用いて観察される LEEDパターンでは、入射電子と垂直な面で回折されたスポットは入射エネルギーを変えて もその位置が移動しない。一方、入射電子ビームに対して傾斜した面で回折された場合に は、入射エネルギーとともに回折スポットの位置が移動する。これを解析するとファセッ トの傾斜角を求めることができる4)。

LEEMの分解能は、コントラストアパーチャによる回折、および対物レンズの色収差、 球面収差によって決まる。LEEMでは、低エネルギーの電子を用いるために、色収差によ る影響が比較的大きい。これら三つの寄与を取り込み角度の関数として計算した例をFig.5 で、daは回折収差、daおよびdaはそれぞれ色収差、球面収差による寄与である16)。図から わかるように、角度が小さくなると回折収差によって分解能が劣化する。一方、角度が大 きい場合には色収差や球面収差によって分解能が制限される。したがって、これらのバラ ンスによりある角度で最も高い分解能が得られる。現在、LaB6 電子源を使用した場合には 公称では約7 nm、電界放射型の電子源を使用した場合には約5 nmの分解能が得られている。 両者の違いの原因の一つとして、エネルギー広がりによる色収差の大きさの違いが挙げら れる。また、対物レンズの種類によっても得られる分解能が異なっており、磁場型の対物 レンズで高い分解能が得られることが知られている1)。

表面電子顕微鏡の分解能は透過電子顕微鏡(TEM)や走査プローブ顕微鏡(SPM)のよう に原子を観察することができるほど高くはない。それは低エネルギーの電子を像形成に使 用しているための制約があるためである。通常は 10nm 程度の空間分解能を持つとされてい るが、この制限は必ずしも対物レンズの球面収差や色収差が支配しているばかりではない。 振動や環境から入ってくる交流磁場ならびに像取得用の二次元検出器等の影響も大きい。 現在ではこれらの影響を減らしかつ球面収差や色収差を補正して分解能をあげる努力が行 われている。代表的なプロジェクトはドイツで大々的に進められてきた SMART プロジェク トであろう 19) 。これは Rose のグループにより計算された「ミラーコレクタ(電子鏡)」 により球面収差と色収差の補正を行う方法である 20)。「ミラーコレクタ」を用いて負の 収差係数を得る方法であり、補正法自身の原理は難しくない。ベルリンの放射光施設 BESSYIII で実際に試みられてきた。しかし精度の高い計算や安定度が高い電源ならびに忍耐 強い実験が要求されるために必ずしも簡単な方法ではない。SMART プロジェクトが 1997 年 に開始され9年後にやっと3.1nmの分解能が得られたことでもわかる21)。 最近では, Au(111)のステップコントラストから 2.6nm22)、グラフェン表面で観察される層数の違い によるコントラストから約 2nm23)の分解能が得られている。 最近は収差補正機能をもった LEEM/PEEM が市販されるようになった。ドイツの2社(ELMITEC 社と SPECS 社)により発売 されている。2nm 程度の分解能を得たという報告を行なっている。

LEEM/PEEM では、電子鏡による収差補正 19-21)が一般的であるが、飛行時間を利用した収差補正 24)や焦点位置変調による収差補正 25)も試みられてきた。Fig. 5 では色収差および球面収差が 1/20 になるように収差補正を行ったと仮定した場合の計算曲線も描かれて

いる。図からわかるように収差補正を行うと、分解能の向上とともに、コントラストアパ ーチャによる取り込み角度を大きくすることができる。LEEM では角度広がりが小さい回 折ビームを結像しているため、取り込み角度を大きくする必要性はあまりない。しかし、 信号強度が小さい X線励起の PEEM では、収差補正を行って分解能を良くするとともに、 取り込み角度を大きくして信号強度を稼ぐという大きなメリットがある。

紫外光を用いた PEEM による像形成過程は主に仕事関数の差に負うところが多い。しかし 当然電子状態密度も大きな影響を与える。X 線を用いた場合の XPEEM についてはすでに述べ たので、LEEM の像形成過程について述べる。

2.2 LEEM の像形成

2.2.1 回折コントラスト

基本的な考え方は透過電子顕微鏡(TEM)と同じである。まず回折によるコントラストを 考える。Fig.6a,b,cにLEEMの像を撮る手法を示している。TEMと同じように明視野(a,b) で像を撮る場合と暗視野(c)で像を撮る場合の原理を示している1-3)。Fig.7にW(110)面 からの実験で得られた低エネルギー電子の反射率と〈110〉方向の電子状態を示す1)。電子 状態に大きく依存して反射率が変化していることが分かる。しかし、反射率はバルクの電 子状態をそのまま反映しているわけではない。入射エネルギーが1-6eVのあたりでは、バ ルクの電子状態では禁制帯になっているために電子がすべて反射しなければいけないはず だが、そうはなっていない。これらのことを説明しようとすると、以下のことを考えない といけない。(1)電子線の多重散乱、(2)電子線の浅い侵入深さ(そのために表面付 近の情報をもたらす)、(3)電子線の非弾性散乱効果、(4)表面での結晶試料の再配 列や緩和、(5)表面準位の影響、(6)表面付近にある欠陥等 である。Fig.7にW(110) とW(100)のエネルギーに依存した反射率の違いを示してある1-3)。表面に生じている面 が異なれば、強い回折コントラストが生じることが分かる。

2.2.2 干渉コントラスト

干渉によるコントラストを考える必要がある。干渉コントラストには2種類あって、一 つは(1)幾何学的位相コントラストで、もう一つは(2)量子サイズコントラスト で ある。まず幾何学的位相コントラストにつき述べる。Fig.6に干渉による2種類の干渉コン トラストが生じる原理図を示してある)。Fig.56dが幾何学的位相コントラストを、Fig.6 eは量子サイズコントラストを示している。前者は単原子ステップによるコントラストが生 じる理由を示している。しかし、LEEMの分解能は原子像を見るほど高くはないが、明瞭な 単原子ステップの象を観察することが出来る。これは干渉効果によるもので、Altmanのグ ループがコントラストの計算を行なっている。Fig.8はそのモデルで、Fig.9 はその結果 である。一原子層のステップが存在していることによる位相の違いを光源の位置が有限で あるフレネル回折の考え方を用いて計算を行なっている 26)。Fig.9の結果の ϕ はステップ を横切るときの位相シフトである。横軸のステップからの距離の単位はステップ高さ a_0 で ある。0 がステップの位置を示している。負符号側が上部テラス側に対応している。これを 見るとステップ位置からかなり離れた距離までコントラストが広がっていることがわかる。 これが原子オーダの分解能を持たない LEEM で単原子ステップが観察出来る理由である。位 相シフトによりコントラストが反転していることがわかる。この結果は LEEM 像からどちら が上のテラスであるかを判定する唯一の手がかりを与える。Fig. 10 (a), (b), (c)に実際 に得られた Mo (100) 面の単原子ステップの像を示す)。Fig. 10 (a) は E=8.50 eV で ϕ =1.50 π 、(b) は E=23.5 eV で ϕ =2.49 π 、(c) は E=34.0 eV で ϕ =3.00 π の結果である。位相が変 わるにつれてステップのコントラストが反転していることがわかり、どちらが上部のテラ スであるかがわかる。

量子サイズコントラストは入射電子線のエネルギーが小さいために電子線の波長が単 原子オーダの薄膜で干渉するために生じる。Fig. 11 に Sb/Mo (001)の実験結果の例を示す 27)。 (a) は E=4.5 eV で(b) は E=5.5 eV である。島のコントラストが反転していることがわかる。 Fig. 11(a) で明るいところは、Sb が 2 原子層成長し、暗いところは 3 原子層成長している 23)。Fig. 12 に低エネルギー電子線回折で利用している動力学的多重散乱法を使用して計算 を行なった Cu/W(110)の計算結果を示す 27)。入射エネルギーに対して反射電子線の強度 が周期的に変化していることがわかる。これが量子サイズ効果の成因である。

LEED パターンは表面原子の配列を反映している。これを解析することにより表面の構造 を得ることが可能である。LEEM 光学系における LEED パターンは通常の半球形のスクリーン を使った LEED 光学系とは異なった振る舞いを示す。LEEM ではすでに述べたように制限視野 アパーチャにより表面の局所的な領域からの LEED パターンを得ることが出来る。表面が一 様な構造をしていない場合でも、局所的な領域の構造を解析できる。通常の半球型スクリ ーンを使用した LEED 光学系で得られた LEED パターンでは入射エネルギーを高くすると LEED パターンは縮小し、低くすると拡大する。これは入射エネルギーが高くなると波長が 短くなり、エバルト球が大きくなるためである。Fig. 13 は LEEM の電子光学系を仮定した入 射エネルギー(eV₀)と電子光学系にかかっている電圧(V)の関係を示している 4)。電子 光学系には一般的に高電圧がかかっているために、θ。で出射した電子が LEEM の光学系で角 度
θになることを示している。この角度で最終的にスクリーン上に入射する。それぞれの 関係は図内の式に示すとおりである。 試料が入射電子と垂直になっているとすると、Fig. 14 のような回折条件が得られる。二次元の逆格子ロッドとエバルト球が描いてある。今、(hk) スポットの回折点がθ₀の方向に生じたと考える。(00)と(hk)との間の逆格子の距離を d、入射電子線の \mathbf{k} ベクトルを \mathbf{k}_{0} 、 λ を入射電子線の波長とすると、 $\sin\theta_{0}$ と \mathbf{k}_{0} はドウ・ブ ロイの物質波の関係から、Fig.14の右の式のようになる。スクリーン上で観察される回折 スポットに対する角度 θ に対してFig. 14の下部に与えたような関係式が得られる。 $\sin \theta$ は d と V だけで与えられることがわかる。Vo、つまり入射電子線のエネルギーに関係しない ことがわかる。このことは LEEM 光学系で LEED パターンを観察すると、入射エネルギーを 変えても回折パターンの位置は動かないことになる 4)。

しかし、表面のファセットのように傾いた面が生じている場合は状況が異なる。その様 子をFig. 15 に示す。ファセット面が表面から ϕ だけ傾いていると考える。回折角を θ_0 とす ると、 θ_0 と ϕ の間にはFig. の右の式に示すような関係がある 4)。このことを考慮してス クリーン上の角度 θ に対応する sin θ を求めるとFig. 15の下部にある式のようになる。 sin θ は入射エネルギーに依存していることがわかる。つまり、入射エネルギーを変えると 回折パターンの位置が動くということになる。このことを利用すると入射電子線に垂直な 表面と傾いた表面を区別して回折パターンの解析が出来る。Cu/Si (111)に生じる解説パタ ーンについて実際に解析した例がある 28)。

LEEM を使用した膨大な成果が公表されている。ここでは SPLEEM について報告を行うこと が主な目的であるために、それらの成果については触れないことにする。

3. SPLEEM による磁区観察

3.1 他の観察法との比較

一方、メモリデバイス材料の詳細な磁性特性を明らかにすることは高速 MRAM 開発にとっ て大変重要である 29,30)。実用化されている「電流磁場方式」は大容量化には不利とされ ており、それに代わる「スピントランスファートルク(STT)方式」や「電場印加方式」等 の提案がなされてきた 31-37)。このような新しいデバイスに有用な材料を開発する場合、 必要となるのはナノオーダの磁区特性の詳細を知ることである。種々の観察手段が開発さ れてきた。代表的なものを上げると、光学的手法(カー効果顕微鏡)、スピン走査電子顕 微鏡(スピン SEM)、透過電子顕微鏡(TEM, ローレンツ法、ホログラフィ法)、磁気力顕微 鏡(MFM)、スピン偏極 STM(走査トンネル顕微鏡)、磁気円二色性光電子顕微鏡(XMCDPEEM) と X 線磁気線二色性光電子顕微鏡(XMLDPEEM) (レーザを使用した PEEM もある)、スピン 偏極低エネルギー電子顕微鏡(SPLEEM)等がある。本報告書にもこれらの手法の詳細が記 されている。それぞれ長所ならびに短所がある。カー効果顕微鏡は手軽に使用できるとい う長所があるが、光学手法であるので空間分解能が高くない。TEM の分解能は高いが薄膜を 使うのでバルクの性質を知るときには問題が生じる。スピン SEM は実用的な材料に有効で あるが測定に時間がかかる。MFM は比較的高い空間分解能を有しているが、早い現象を見る 場合には不利である。スピン偏極 STM は原子分解能を持っており分解能としては最も高い。 ただ、自由に探針のスピン方向を制御できない欠点がある。XMCDPEEM と XMLDPEEM は有効な 観察手段であるが分解能が多少劣る(100nm オーダ)ことと放射光という大型施設を使用す るという不便さがある。最近はレーザの偏光と PEEM を組み合わせた観察も行われている。 放射光施設に行かなくてもいいために、今後の発展が期待されている。SPLEEM は 10nm オー ダの空間分解能(収差補正をすると 2-3nm)を有しているが一画面得るのに従来は 5-30 秒 オーダ必要であった。本解説では投影型の表面顕微鏡である低エネルギー電子顕微鏡 (LEEM) 1-6)がもつ長所である実時間観察の可能性を磁区観察にも適用したいと考えて開発を行っ てきたので、その開発の内容と得られた結果の一部を報告する。具体的には輝度が高く、 偏極度が高くかつカソードの寿命が長い電子銃の開発が必要である。さらに開発した顕微 鏡を用いてスピントロニクスにとって重要である磁性薄膜材料の磁区特性の実時間観察も 含めた結果の一部を紹介する 38-41)。

3.2 SPLEEM を用いた磁区観察の原理

スピン偏極電子を用いて磁区を観察する原理を述べる。Fig. 16 はスピン偏極した電子(ス ピンの方向はカソード面に垂直)がカソードから出射して、試料に照射する様子を示して いる1)。カソードとして従来は通常 GaAs のバルク試料を使用してきた。このカソードに 円偏光したレーザ光を入射させてスピン偏極した電子ビームを取りだす。その後、電場と 磁場を重畳したスピンマニピュレータにより試料面と垂直方向にスピン方向を変えること が出来る。またコイルで構成されたスピンローテイタで面内方向にスピン方向を変えるこ とが出来る。このようにして真空中において三次元の自由な方向に電子線のスピンの方向 を操作することが出来る。測定手法により、自由にスピンまたは磁区方向を変えるのが難 しい場合があるが、SPLEEM は方向に関して定量的な測定が出来る可能性を有していること を意味している。入射電子ビームのスピン偏極を P, 試料の磁化を M とすると P と M は以下 のように交換相互作用による項を表す。

 $V_{ex} \sim \mathbf{P} \cdot \mathbf{M}$ (1) LEEM の強度 I は

 $I = I_0 + I_{ex}$

(2)

 I_{ex} は V_{ex} に比例した入射スピン偏極電子と試料の磁化の方向に由来する強度である。 I_0 は通常の LEEM 像の強度であり、 I_{ex} が磁化に依存する強度に対応する。この強度をそのまま像にすると I_0 が大変大きいために I_{ex} を観察するのは難しい。レーザの円偏光の方向を変えることにより、出射する電子ビームのスピンの方向が 180°変わる。そこで二種類の強度 I^{\pm} を得ることが出来る。

 $I^{\pm} = I_0 + I^{\pm}_{ev}$

(3)

この強度をもとにして、磁区コントラストは交換非対称度(exchange asymmetry)で以下のようにあらわせる。

 $A_{ex} = (I_{ex}^{+} - I_{ex}^{-})/P(I_{ex}^{+} + I_{ex}^{-})$ (4)

ここで P はスピン偏極ベクトルの大きさを表し、通常スピン偏極度と呼ばれる。 つまり強い LEEM による強度 I₀が消え、磁化によるコントラストだけが得られることになる。 試料の磁区コントラストを得る場合には 2 枚の像を取る必要があることを示している。

Fig. 17 に Co/W(110)の磁区像を得た例を示す 42)。Fig. 18 は SPLEEM で得られた磁区像が どの程度のコントラストを持っているかを示した実験結果である 43)。試料は Co/W(110)で ある。LEEM 像では明瞭な単原子ステップが観察されている。180°偏光が異なったレーザ光 を入射したときに得られる像を中央に示す。単原子ステップは明瞭に観察されるが、磁区 コントラストは非常に弱いコントラストとして観察されている。これを式(4)に従って演 算を行った結果を Fig. 18 の右に示す 44)。非常に明瞭な磁区像が観察されている。このよ うな弱いコントラストを像として取り込むために、通常 LEEM では実時間観察ができても磁 区観察では容易にはできないことになる。以下に述べる全く新しい超高輝度・高偏極度・ 長寿命スピン偏極電子銃が必要なことが理解できる。

3.3 超高輝度、高偏極、長寿命スピン電子銃の開発 38-41)

超高輝度・高偏極・長寿命スピン偏極電子銃の開発の概要は、本報告の中に桑原等によりその詳細が述べられている44,45)。また、フォトカソードの開発の結果は同様に竹田により記述されている46)。そこでここではSPLEEMに関連する部分を強調しながら述べることにする。

SPLEEM 用の電子銃の開発は最初 Bauer のグループにより行なわれた 47)。初期に開発さ れた SPLEEM の写真を Fig. 19 に示す 47, 48)。これを用いて種々の磁区観察が行われてきた。 10 年程度前にこれをもとにして市販のスピン偏極電子銃が市販された。性能としては最初 に開発された SPLEEM の方が高い。ここでは著者らも手に入れたこの市販のスピン偏極電子 銃との比較を中心にして述べることにする。市販の SPLEEM 用スピン偏極電子銃の大きな問 題点は、1)カソードに GaAs バルク結晶を使用しているために最大で 50%のスピン偏極度 しか得られず、非弾性散乱や欠陥による電子の散乱のために強い減偏極作用が生じ、実用 的には通常 20-25%の偏極度で使用してきた。これはコントラストの低下をもたらす。2) 輝度が十分でないために、信号強度が充分に得られない。従って S/N 比が低くなり、一画 像を得るのに長時間(2枚の画像を得るために 5-30 秒程度)必要であるとことを意味して いる。そのために実時間観察は不可能であった。3)カソード表面を負の親和力を持った 状態(NEA 表面)にして仕事関数を低下させることが、電子ビームを得るためには必須であ る。市販品では NEA 表面の寿命が 3-4 時間しかなく、実質的な実験を行うのが難しかった。

まず1)の問題を解決するために「歪み超格子」(GaAsとGaAsPのペアを積み重ねたもので基板はGaPを使用)を使用した。スピン偏極度は大幅に改善され90%になった。この詳細については桑原と竹田等による本特集の解説44-46)に詳しく記されているのでここでは説明を略す。2)の問題に対してはレーザ光を背面から照射することにより克服した。前面照射ではスピン偏極マニピュレータ(スピンの方向を垂直方向に変えるデバイス)や電子光学系があるためにレンズとフォトカソードの感覚が60-70 c m必要であった。背面照射することにより、その距離を2mmまで短くすることが出来超高輝度を達成した。輝度は1.3x10⁷A/cm²・sr である。市販品に比べて10,000倍以上向上した。またLaB₆に比較しても一桁程度大きな値を持っている40-43)。背面照射の概念図をFig.20に示す。3)の問題を克服することは実験を行う上で大変重要である。NEA表面を得るためには通常Csと02を使用して表面に強い電気的なダイポールを作り仕事関数を低下させる。Csはアルカリ金

属なので非常に活性である。NEA 表面を長く維持しようと思えば、超高真空(UHV)では不 +分で極高真空(XHV, 10⁻¹⁰Pa オーダ以下)が必要になる。カソードがある電子源部は電子 線が出ている状態でも XHV を保つことが重要である。かつ放出した電子がアノード等の電 極にあたることにより、電子衝撃脱離で原子や分子を放出し、その原子や分子が電子ビー ムでイオン化され電子とは逆にカソードに向かい損傷を与える。このような損傷を避ける ために市販の電子銃とは全く逆の発想を行った。市販の電子銃では、カソードとアノード 間に損傷を軽減するために低い引きだし電圧(400V 程度)をかけている。しかしこのよう にすると放出された電子がアノードにあたり原子や分子を脱離させる。電子ビームでイオ ン化され、カソードに衝突し損傷を与え寿命を短くする。我々は逆に高電圧をかけること により、レンズ作用を強くして放出された電子がアノードにあたることなく次の電子光学 系に行くようにした 49)。この様子を示す電子光学系の軌道解析を行なった結果を Fig. 21 に示す 49)。ほぼ 0 eV 表面垂直から 90°の範囲で出射した電子の軌道を計算した結果であ る。この結果は出射した電子は100%次の光学系に移送されていることがわかる。出射電子 がアノードには衝突せず、従って電子衝撃脱離によりアノードからの原子が脱離しないこ とを示している。これがカソードの NEA の寿命を飛躍的に向上させた。市販の電子銃では せいぜい 3-4 時間であった NEA 表面の寿命が 2 カ月以上の寿命を持つにいたった。今まで 物性研究を行うために世界中の多くの研究機関で「スピン偏極電子銃」の開発が行われて きたが、多くはその開発を断念せざるを得なかった。その理由はひとえに「寿命」である。 Bauer 教授のグループはその寿命を1日に改善することにより、実験を行ってきた。NEA 表 面が劣化してきた場合には、カソードの温度を上げるだけで簡単に表面の清浄化が出来る。 そうすると再びアクテイベーションを行い使用することが可能になる。最近まで使用した カソードは2年以上使用した。

また、この電子銃を使用する場合、レーザ光の偏光を偏光板により円偏光から直線偏光 (逆も可)に切り替えることにより磁区像の観察からすぐに LEEM 像(電子顕微鏡像)の観 察に切り替えることが出来る。従って、LEEM 像観察に使用していた LaB₆等の電子源は不要 だということになる。また LEEM 像と磁区像を同じ視野ですぐに観察することが出来ること も意味しており、表面の状態と磁区がどのような関係にあるか議論が出来ることになる。 高い空間分解能でこのような観察が簡単にできることは磁性材料の性質をより詳細に研究 できるということを意味している。

またこのカソードから放出される電子のエネルギー幅は電界放出電子源に比べても小さ いことが期待されている。スピン偏極電子銃として使用するだけでなく、高エネルギー分 解能電子銃としても使用が期待できる。

Fig. 22 に試作した電子銃を装備した LEEM の写真を示す。右の方に試作したスピン偏極電 子銃があり、左の方に SPELEEM (スペクトロスコピック LEEM:エネルギー分析可能な LEEM) がある。中間には市販のスピン偏極電子銃ならびに LaB₆電子銃(装置の背面になっていて 見えない)がある。スピン偏極電子源チャンバの真空を XHV に保ったり、スピンの方向を 制御するスピンマニピュレータを備えているためにスピン電子銃のサイズが少し大きくなっている。現在新しいプロジェクトで小型化を行うために開発を進めている。電子スピンの方向を三次元方向に制御するために「スピンマニピュレータ」と「スピンローテイタ」という2種の機器を使用しているが、これを多極子ウイーンフィルタにより一つの機器で 三次元のスピン方向を変えることができる。三次元スピンマニピュレータ(3D spin manipulator)と呼んでいる。これは多極子 Wien filter であり、電場と磁場をそれぞれの 極子に同時に印加する手法であり、新しい考え方に基づいている。現在三次元のスピン方向の制御ができている 50)。

4. 試作 SPLEEM による磁区の実時間観察

このようにして開発した電子銃を搭載した SPLEEM により、実際に磁区を観察した例を示 す。Fig. 23 は W(110)上に Co を積層して得た磁区像である 41)。信号取得時間に対して得ら れた像を示している。すでに述べたように 2 枚の像を得ることにより 1 枚の磁区像を得て いる。信号取得時間が 0.02 秒でもはっきりと磁区像が観察されている。市販のスピン偏極 電子銃を使用した場合と比較すると実に 200 倍以上早く像が得られていることになる 41)。 ビデオレートが約 0.03 秒であるから、それより早く像取得が行われており、実時間観察が 実現したことを示している。それより長い取得時間では像の S/N 比があがり、さらに鮮明 な像になっている。実際にビデオのように Co の蒸着に応じて磁区が変化していく様子が撮 影されている。実時間で観察されるために磁区の変化を詳細に知ることが出来、刻々変化 する材料の特性に関するより詳しい議論が可能になる。

5. スピントロニクス薄膜材料への応用

5.1 [CoNi_x]_y薄膜層の磁区特性の観察

開発した SPLEEM を実際の薄膜材料の観察に応用した。すでに述べたように「電流磁場方 式」の次に来るモデルが盛んに提案されている。「STT 方式」はその候補の一例である。電 流により磁壁を移動させることにより、磁区の特性を変化させメモリデバイスに応用しよ うというものである。磁壁の移動が電流密度に依存するために素子を微小化した場合でも 電流が大きさに応じて小さくできるということが大きな長所とされている。実際に IBM や NEC がこのような考え方にもとづいたメモリデバイスを提案している 34,35)。理論的な提 案は Berger により提案されたが 31)、微小ワイヤーを用いたパイオニア的な実験が京都大 学の小野グループにより行われた 32)。その後垂直磁化材料を用いた方が電流密度の閾値 を下げることが出来るということが明らかにされた。小野グループと NEC は垂直になる薄 膜材料を探索した結果、[CoNi_x],多層膜を提案した 33)。実際には[CoNi₃]を数層以上重ね た多層膜で安定な垂直磁気異方性が得られるという報告をしている。ここでは W(110)表面 上の[CoNi_x],の成長に伴って薄膜の磁区特性が変化する詳細な観察を行った。入射電子線の スピン方向を 3 次元方向に自由に制御できるので、垂直ならびに面内の複数の方向に入射 スピンの方向を制御して観察した。Fig. 24 にその実験結果を示す 51)。試料は[CoNi₂],で ある。[CoNi₂]は種々の組み合わせで実験を行った結果最も強く垂直磁区異方性を示すこと が分かったので採用した。その結果、1ペア形成後に 2 原子層の Ni が形成したあとは強い 面直方向の磁区が形成される。しかしその後 Co を一原子層形成させると垂直磁化はほとん どなくなり強い面内磁化が現れる。4ペアが形成後は表面に Co であっても Ni であっても 安定した垂直磁化が現れる。この様子を動画を使って観察すると、垂直と面内磁化が交互 に現れる段階では、2 原子層の Ni が約 20-25%程度で急に垂直磁化に変化することが分か る。また膜のペアが増加すると垂直に変化する膜厚も増加することもわかった。磁区の形 状がドラスティックに変化する様子もつぶさに観察することが出来る。垂直磁化が生じる 場合には比較的大きな磁区が生じているが、面内磁化が強い場合には小さなサイズの磁区 が生じていることが分かる。このことはある程度厚い[CoNi₂],が形成すると安定な垂直磁化 が現れ、電流密度の閾値が下がることが期待できることを示している。

これら一連の実験結果は、お茶の水大学の工藤和恵等により、LLG

(Landau-Lifshitz-Gilbert)方程式をもとにしたシミュレーションにより再現された 52)。 実験結果をうまく再現している。また、実験で観察された磁壁についてもシミュレーショ ンで鮮やかに示されている。Fig. 25 に実験結果とともにシミュレーション結果を示す 52)。

5. 2 一原子層の Au 原子を形成による磁区構造の変化

[CoNi₂],では4ペア以上で安定な垂直磁化が得られることを示したが、もっと少ないペア で他の元素を使用して垂直磁化が得られないか確認を行った。すでに Duden と Bauer が Co/W(110)上にAuを形成させたときに最高60-70%の割合で垂直磁化が得られることを報告 している 53) 。そこで[CoNi,]/W(110)上に一原子層の Au を形成させた。[CoNi,]/W(110)で は強い面内磁化を示すが、わずか一原子層の Au を形成するだけで強い垂直磁化に変わるこ とが確認された。Fig. 26 にその様子を示した 7,8)。[CoNi,3]/W(110)の面内磁化は[1-10]方 向を向いており、[00-1]には磁化はない。かつ垂直方向にも磁化はないが、一原子層の Au でほぼ 100%垂直に磁化が変化していることを示している。この変化を動画で観察すると変 化の様子が詳細に見て取れる。このようなドラスティックな変化は界面での磁気異方性に よると思われる。しかし、LEEDパターン等を観察するともう少し詳細なプロセスが推察で きる。まず面内磁化が強い場合は磁区のサイズが大きい。Au 層が形成するにつれて垂直磁 化が強くなっていくが、その磁区のサイズはかなり小さい。このことから考えても面内磁 化を持つ磁区がそのまま垂直磁区に移行するのでないことがわかる。LEED パターンを観察 するとAuの蒸着の初期にはAuに起因するLEEDスポットは現れない。このことはAuが二 次元の島を形成しているのではなく、ガスのようにアモルファス上になっていることが分 かる。蒸着が進むにつれ、比較的急に Au に起因するスポットが現れ、位置がシフトしなが ら強度が大きくなっていく。このことは二次元の Au のクラスタが形成していることを示し ている。この形成された二次元のクラスタが界面の磁気異方性に寄与し、強い垂直磁化を

生じさせていることが理解できる。また LEEM を観察していると、強くステップバンチをしている領域とフラットなテラスが広がる領域が混在している様子がわかる。しかし、このステップバンチと磁区の形状にはほとんど相関性がない。このことは表面の欠陥であるステップが、磁区の形成に大きく寄与していないことが分かる。LEEM 像、LEED パターンを得ることでより詳細なプロセスを知ることが可能である。実際の理論的な解析は現在理論グループとともに解析を行っているところである。

このように薄い[CoNi₂]膜でも異種元素を使うことにより垂直磁化を得ることが出来ることは、STT デバイスを作製するときに Au をキャップ物質として使用して特性を変えることに寄与させることが可能であることを示唆している。他の元素にもこのような特性を有するものが存在すると考えられるのでその詳細を調べることは今後重要であると考えられる。

*共同研究者である中西彊名古屋大学名誉教授は素粒子の分野での新粒子発見に重要な 高性能スピン偏極電子銃の開発に多大の貢献をしてこられた。そのベースをもとに3グル ープ(中西、竹田、越川グループ)によるスピン偏極 LEEM の開発が行われた。幸いにも、 その性能の高さは世界的にも認められている。開発に多大の貢献をして来られた中西名誉 教授は残念ながら 2012 年 12 月に病のために逝去された。ご冥福をお祈りしたい。

謝辞

スピン偏極電子銃の開発には共著者以外にも多くの方々が携わってきた。共著者以外の 名前を上げると以下のとおりである。

中西グループは電子銃のデザインならびに製作を担当した。貢献したのは、名古屋大学の 中川靖英氏、許斐太郎氏、真野篤志氏、山本尚人氏、桑原真人特任講師、奥見正治氏、大 学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構(KEK)の山本将博氏、株式会社日立製作 所 中央研究所の孝橋照生氏、大嶋卓氏、大同大学の坂貴教授、大同特殊鋼株式会社の加藤 俊宏氏、大阪府立大学の堀中博道教授で、感謝の意を表したい。

竹田グループはカソードの製作を行った。貢献したのは、名古屋大学の金秀光特任助教、 宇治原徹教授である。感謝の意を表したい。越川グループは電子光学系の計算、LEEM への 取り付け・調整・評価ならびに実際の磁性薄膜を使った実験を担当した。電子光学系のシ ミュレーションや実際の調整ならびに実験を実行するにあたっては大阪電気通信大学エレ クトロニクス基礎研究所・客員研究員津野勝重氏、橋本道廣氏の貢献があった。感謝の意 を表したい。

本研究を遂行するにあたって主に JST 先端計測分析技術・機器開発(要素技術)

(No. 19201022) (2005-2009 年度)の補助を受けた。引き続き JST 産学イノベーション加速事業、先端計測分析技術・機器開発(機器開発) (2010-2013 年度)ならびに JST 産学イノベーション加速事業の補助を受けて小型スピン偏極電子銃の開発を続けている。それ以外に日本学術振興会・学術創成研究費(No. 13GS0022) (2001-2005 年度)、科学研究費補

助金基盤研究A(2007-2010年度)、基盤研究A(2011-2013年度)のサポートも受けているので謝意を表する。

参考文献

- 1. E.Bauer, Rep. Prog. Phys. 57, 895 (1994).
- E. Bauer, Electron Microscopy Principle and Fundamentals, ed. S. Amelincks, D. van Dyck, J. van Lauduyt and G. van Tendeloo, p. 243, VCH (1997).
- 3. 越川孝範、表面科学 23, 262 (2002).
- 4. 安江常夫、越川孝範 表面科学 23, 271 (2002).
- 5. 越川孝範、顕微鏡 41, 189 (2006).
- 6. 越川孝範、応用物理 79, 1108 (2010).
- 7. 越川孝範、中西彊、竹田美和、まぐね 6, 314 (2011).
- 8. 越川孝範、鈴木雅彦、安江常夫、E. Bauer、中西彊、金秀光、竹田美和、顕微鏡 48,9 (2013).
- M. Mankos, D. Adler, L. Veneklasen and E. Munro, Surf. Sci., 601, 4733 (2007).
- 10. Y. Uchikawa, M. Kojima, M. Ichihashi and S. Maruse, Jpn. J. Appl. Phys. 8, 436 (1969).
- 11. 市ノ川竹男、日本結晶学会誌 24, 385 (1982).
- 12. E. Bauer, Ultramicroscopy 17, 51 (1985).
- 13. W. Telieps and E. Bauer, Ultramicroscopy 17, 99 (1985).
- E. Bauer, J. Phys. Cond. Matt. 21, 314001 (2009).
 この論文に開発の歴史についての記述がある。

15.

16. 安江常夫、越川孝範、「低速電子顕微鏡(LEEM)」(マイクロビームアナリシスハンドブック、オーム社、2014)日本学術津振興会マイクロビームアナリシス第141委員会編集(印刷中).

- 17. J. de la Figuera, J. M. Puerta, J. I. Cerda, F. ElGabaly and K. F. McCarty, Sur, Sci. 600, L105 (2006).
- J. B. Hannon, J. Sun, K. Pohl and G. L. Gellog, Phys. Rev. Lett.,
 96, 246103 (2006).

19. Th. Schmidt, S. Heun, J. Slexak, J. Diaz, K. C. Prince,G. Lielinkamp and E. Bauer, Surf. Rev. Lett. 5, 1287 (1998).20. H. Rose and D. Preikszas, Optik 92, 31 (1992).

21. Th. Schmid, 第5回 LEEM/PEEM 国際会議で報告(2006年10月、 姫路).

- 22. R.Fink, M.R.Weiss, E.Umbach, D.Preikszas, H.Rose, R.Spehr,
- P. Hartel, W. Engel, R. Degenhardt, R. Wichtendahl, H. Kuhlenbeck,

W. Erlebach, K. Ihmann, R. Schloegl, H-J. Freunf, A. M. Bradshaw.

G. Lilienkamp, Th. Schmidt, E. Bauer and G. Benner, J. Elctron Spec. Rel. Phnom. 84, 231 (1997).

- 23. R. M. Tromp, J. B. Hannon, A. W. Ellis, W. Wan, A. Berghaus and O. Schaff, Ultramicroscopy 110, 852 (2010).
- 24. G. Schoenhense and H. Spiecker, J. Vac. Sci. Technol. B20, 2526 (2002).
- 25. T.Koshikawa, H.Shimizu, R.Amakawa. T.Ikuta, T.Yasue and E.Bauer, J.Phys. Cond.Matt. 17, S1371 (2005).
- 26. M.F. Chung and M.S. Altman, Ultramicroscopy 74, 237 (1998).
- 27. M.S.Altman, W.F.Chung, Z.Q.He, H.C.Poon and S.Y.Tong, Appl.Surf.Sci. 169/170, 82 (2001).
- T. Yasue, T. Koshikawa, M. Jalochowski and E. Bauer, Surf. Sci.
 381 (2001).
- 29. 宮崎照宣、水上成美、渡邊大輔、Feng Wu:まぐね 5,164 (2010).
- 30. 石綿延行、深見俊輔、鈴木哲広、大嶋則和、永原聖万、三浦貞彦、杉林直彦:まぐね5, 178 (2010).
- 31. J.Berger: Phys. Rev. Lett. B54, 9353 (1986).
- 32. A. Yamaguchi et.al., Phys. Rev. Lett. 92, 077205-1 (2004).
- 33. T.Koyama el.al., Appl. Phys. Express 1, 101303 (2008).
- 34. S. S. P. Parkin, M. Hayashi and L. Thomas, Science 320, 190 (2008).
- 35. H. Numata, M. Hayashi, N. Oshima, S. Fukami, K. Nagahara, N. Ishiwata and N. Kasai, VLSI Tech. Symp. Tech. Dig., P232 (2007).
- 36. J.Gerhard el al., Nature Nanotechnology 5, 792 (2010).
- 37. T. Maruyama el. al., Nature Nanotechnology 4, 158 (2009).
- 38. X.G. Jin et.al., Appl. Phys. Express 1, 045002 (2008).
- 39. N. Yamamoto et. al., J. Appl. Phys. 103, 064905 (2008).
- 40. X.G. Jin et. al., J. Cryst. Growth 310, 5039 (2008).
- 41. M. Suzuki et. al., Appl. Phys. Express 3, 026601 (2010).
- 42. K. L. Man, R. Zdyb, S. F. Hung, T. C. Leung, C. T. Chan, E. Bauer and M. S. Altman, Phys. Rev. B67, 184402 (2003).
- 43. M. Suzuki, T. Yasue and T. Koshikawa, unpublished.
- 44. 桑原真人、中西彊、竹田美和、田中信夫、顕微鏡 48, 3 (2013).
- 45. 桑原真人、中西彊、「スピン偏極電子ビーム源に関する技術開発」(本報告書)

- 46. 竹田美和、本報告書
- 47. M. S. Altman, H. Pinkvos, J. Hurst, H. Pappa, G. Marxs and E. Bauer, Mat. Soc. Symp. Proc. 232, 125 (1991).
- 48. Countesy of E.Bauer
- 49. T. Koshikawa, T. Yasue and T. Nakanishi, unpublished
- 50. T. Yasue, M. Suzuki, K. Tsuno, S. Goto, Y. Arai and T. Koshikawa, Rev. Sci. Instrum. in press.
- 51. M. Suzuki, K. Kudo, K. Kojima, T. Yasue, N. Akutsu, W. A. Dino, H. Kasai, E. Bauer and T. Koshikawa, J/Phys. Cond. Matt. 25, 406001 (2013).
- 52. K. Kudo, M. Suzuki, K. Kojima, T. Yasue, N. Akutsu, W. A. Dino, H. Kasai, E. Bauer and T. Koshikawa, J/Phys. Cond. Matt. 25, 395005 (2013).
- 53. T. Duden and E. Bauer, Rev. Rev. B66, 468 (1999).



Fig.1 世界で最初に開発された LEEM(Clausthal 工大) (E.Bauer 教授提供)



Fig.2 LEEM/PEEM に関係した種々の表面顕微鏡。入射ビームや信号の種類による種々の情報を得る ことができる多機能性を有している。



Fig.3 LEEM による顕微鏡像(LEEM 像)と回折パターン(LEED パターン)の形成



Fig.4 LEEM の電子光学系の一例



Fig.5 LEEM の分解能計算例。球面収差(収差係数 ds)、色収差(dc)ならびに回折収差(dd)により 分解能が決まる。収差補正(球面収差と色収差の補正)を行うと分解能の向上が期待できる。



Fig.6 LEEM 像のコントラスト形成のメカニズム。回折コントラスト(明視野像ならびに暗視野像を得ることが できる)ならびに干渉コントラスト(幾何学的位相コントラストならびに量子サイズコントラストにより 像が形成される)。



Fig.7 面の違いによる電子線の反射率。エネルギーならびに面により反射率が大きく変わる。 回折コントラストが生じる原因になっている。



Fig.8 干渉コントラスト(幾何学的干渉コントラスト)を計算するためのモデル(フレネル干渉を仮定している)。



Fig.9 Fig.8のモデルで計算をした結果。位相差によりコントラストがドラステイックに変化する。



Fig.10 Mo(100)を用いた単原子ステップの入射エネルギーによるコントラストの変化。



Fig.11 Sb/Mo(100)による量子サイズコントラストの例。(a)は 4.5eV、(b)は 5.5eV で明暗は層数が異なる。2 および 3 原子層の Sb が成長している。



Fig.12 量子サイズコントラストの計算例。点線は計算を実線実験結果(Cu/W(110))を示す。



Fig.13 LEEM による LEED パターンの形成過程を示す図。装置内の高電圧により軌道が大きく異なる。



Fig.14 入射ビームに垂直な表面からの LEED パターンの形成。入射エネルギーを変えてもパターンは変化しない。



Fig.15 ファセット面からの LEED パターン。エネルギーによりパターンが変化する。



Fig.16 スピン偏極電子のスピン方向の制御。スピンマニピュレータ(試料に垂直方向)ならびに スピンローテイタ(試料表面内)により、自在にスピンの方向を変えることができる。



K. L. Man, R. Zdyb, S. F. Huang, T. C. Leung, C. T. Chan, E. Bauer, M. S. Altman, PRB67, 184402 (2003)

Fig.17 Co/W(110)の入射電子スピン方向に依存した磁区コントラストの変化。



Fig.18 左の図の LEEM 像ではクリアな単原子ステップが観察されている。スピン偏極した電子(レーザの偏光を 180°変えて得た像)による磁区コントラスト。わずかに濃淡が見える程度である。式(4)に従って演算を した結果の磁区コントラスト。はっきりと磁区が観察される。



Fig.19 世界で最初の開発された SPLEEM (Clausthal 工大。Bauer 教授提供)



Fig.20 レーザを背面照射することによりレーザスポットを小さくでき、輝度が増加する。



Fig.21 フォトカソードとアノードの間に 20kV 印加した場合の放出電子の軌道。100%の電子が 次の電子光学系に移送される。



Fig.22 開発した超高輝度・高スピン偏極・長寿命 SPLEEM


Fig.23 開発した SPLEEM により観察した Co/W(110)の磁区像。0.02 秒の撮影時間でも磁区像が得られている。実時間観察が出来ることを示している



Fig.24 [CoNi2]多層膜からの磁区像。CoNi2 のペアごとに磁区が面内と垂直方向にドラステイックに変化 しているが、4ペアを過ぎると安定した垂直時価が得られている。[Co/Ni2]y multy-layer



Fig.25 LLG 方程式を用いた磁区のシミュレーションと実験結果。シミュレーションの傾向は実験結果を よく再現している。



Fig.26 CoNi2/W(110)にAuを一層形成させた場合の磁性特性の変化。

スピン偏極電子ビーム源に関する技術開発

桑原真人、中西彊

1 スピン	偏極電子源の開発目的
1-1 高工	ネルギー物理における役割 4 -
1 - 1 - 1	SLC における成果4-
1-1-2	次期計画における偏極電子源の必要性
1-2 加速器科学以外への応用 8-	
1-2-1	電子顕微鏡への応用8-
1-2-2	その他の物性物理への応用9-
2 NEA-G	iaAs 型スピン偏極電子の生成原理11 -
2-1 GaA	as における偏極電子ビームの生成原理 11 -
2-1-1	真空放出課程(NEA 表面について) 11 -
2-1-2	選択励起12-
2-2 歪み	超格子結晶 14 -
2-2-1	歪み結晶14-
2-2-2	超格子構造16-
2-2-3	<i>歪み超格子におけるスピン偏極電子生成 18 -</i>
2-2-4	NEA 表面電荷制限現象(SCL effect: Surface Charge Limit effect) - 19 -
2-3 NEA	A 表面の寿命21 -
2-4 偏極	i度スペクトルにおける減偏極効果 22 -
3 実際の	装置とその構成(加速器用電子源と電子顕微鏡用電子源を例に)
27 -	
3-1 加速	器用 70keV スピン偏極電子源装置 27 -
3-1-1	電子銃部分28-
3-1-2	移送系29-
3-1-3	偏極度測定系30-
3-2 SPL	EEM 用スピン偏極電子源(透過光型光陰極による高輝度化) 35 -
Reference 37 -	

1 スピン偏極電子源の開発目的

スピン偏極電子源の開発目的は大きく分けて二つある。一つは素粒子物理研究の加速器実験に必要不可欠とされているビーム源の開発である。もう一つは、電子スピンに関する物質科学への応用(光電子分光に関する研究、電子顕微鏡、スピントロニクス等)である。

高エネルギー加速器実験においてスピン偏極電子ビームは、標準理論の検証や核子のスピン構造関数の測定などに多大な貢献をしてきた。SLAC(スタンフォード線形加速器センター)の電子陽電子リニアコライダー(SLC)で行われた Weinberg angle の精密測定では、実際に偏極電子ビームがその威力を発揮している。そして現在、500GeV~1TeV 電子陽電子リニアコライダー(ILC: International Linear Collider)計画においても、超対称性粒子(SUSY 粒子)やHiggs 粒子の探索にスピン偏極電子ビームを用いることが不可欠となっている。これは、素粒子のヘリシティの違いを利用し、衝突点での反応事象で得たい事象を明確にして観測するためである。無偏極の電子ビームでは、その他の反応事象(ILC 計画では W ボソンによるバックグラウンド)を多く含んでしまう。しかし、偏極電子ビームを用いることによりバックグラウンドを抑えることができるのである。また Higgs 探索においても、偏極非対称度のエネルギー依存を測定することで生成したスラカー粒子が Higgs 粒子であるかどうかの判定ができる。

一方、素粒子実験以外におけるスピン偏極電子の活躍の場は、表面観察や表面分析の分 野や、またそのデバイス応用としてスピントロニクス分野がある。物性物理の分野では、表面の 磁区構造や磁性体のスピン偏極状態密度の観測にスピン偏極電子を必要とする表面分析方 法として、スピン偏極低速電子顕微鏡(SPLEEM)、スピン偏極電子エネルギー損失分光 (SPEELS)やスピン偏極光電子分光(SPIPES)がある。また電子顕微鏡や走査プローブ顕微 鏡(SPM)などへの適用も考えられている。電子顕微鏡やSPMにおいて、スピンはその測定対 象の磁区観察に対して多大な威力を発揮する。今日のエレクトロニクスでは、電子の二つの自 由度である電荷とスピンは別々に利用されてきた。この二つの量を一つのシステムで利用する スピントロニクスは、電荷の制御をベースとした半導体エレクトロニクスにスピンというもう一つの 量を加えることにより、デバイスの性能や機能を格段に向上させることが可能となる。この技術 は量子コンピューティングへの応用へのアプローチの一つともされている。スピンの特性をい かして、電荷に基づいた従来のエレクトロニクスでは不可能だったデバイスも実現できることが 期待されている。不揮発性の高速メモリMRAMやSpin-FETなどが代表的な例である。このよ うにスピン情報の取得は、基礎物性的意義のみならず新規でバイス研究においても重要な位 置を占めるものである。

1-1 高エネルギー物理における役割

1-1-1 SLC における成果

自然界には、重力相互作用・強い相互作用・弱い相互作用・電磁相互作用の4つの基本相互作用がある。このうち、強い相互作用・弱い相互作用・電磁相互作用の3つの相互作用は、SU(3)_c×SU(2)_L×U(1)_Yゲージ理論により統一して記述することができる。いわゆる標準模型と呼ばれるものである。

第一世代のレプトンである電子には右巻き電子と左巻き電子の二種類が存在する。左 巻き電子は電子ニュートリノを組とした $SU(2)_L$ に属しており、 $SU(2)_L$ ゲージボソン及び $U(1)_Y$ ゲージボソンと作用する。それに対し、右巻き電子は $U(1)_Y$ に属しており $U(1)_Y$ ゲージボソンとのみ作用する。標準理論における $SU(2)_L \times U(1)_Y$ ゲージ場の相互作用(電弱 相互作用)のラグランジアンは、次式で表される。

$$\overline{L}i\gamma^{\mu}\left(\partial_{\mu}-ig_{1}\frac{Y}{2}B_{\mu}-ig_{2}\frac{\tau^{i}}{2}W_{\mu}^{i}\right)L+\overline{R}i\gamma^{\mu}\left(\partial_{\mu}-ig_{1}\frac{Y}{2}B_{\mu}\right)R$$
(1)

L,L :右巻きフェルミオン,反フェルミオン

R,R : 左巻きフェルミオン, 反フェルミオン

 $g_1, g_2: U(1)_Y ゲージ場の結合定数$

 Y, τ^i :ハイパーチャージ,弱いアイソスピン

ここで、SU(2)_L 群に属する左巻きは二重項、U(1)_Y に属する右巻きは一重項の形をとる。 特に第一世代レプトンは次のようになる。

$$L = \begin{pmatrix} v_L \\ e_L \end{pmatrix}, \quad R = e_R$$
 (2)

電磁相互作用のゲージボソン $A_{\mu}(7_{T})$ と弱い相互作用のゲージボソン $Z_{\mu}(Z$ ボソン)は ワインバーグ角 θ_{W} を用いて、 $U(1)_{Y}$ ゲージ場 B_{μ} と $SU(2)_{L}$ ゲージ場 W_{μ}^{0} の混合状態として 表される。また第一世代の場合、結合定数 g_{1},g_{2} はワインバーグ角 θ_{W} により表される。

$$\begin{pmatrix} Z_{\mu} \\ A_{\mu} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta_{W} & -\sin \theta_{W} \\ \sin \theta_{W} & \cos \theta_{W} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} W_{\mu}^{0} \\ B_{\mu} \end{pmatrix}$$
(3)

$$g_1 = \frac{1}{\cos \theta_w}, g_2 = \frac{e}{\sin \theta_w}, e: 電荷素量$$

これより、ラグランジアンをA_µおよびZ_µで書き表し、電子の相互作用の項を取り出してみる と次のようになる。

$$-e\left(\overline{e}_{L}\gamma^{\mu}e_{L}+\overline{e}_{R}\gamma^{\mu}e_{R}\right)A_{\mu}+\frac{e}{\sin\theta_{W}\cos\theta_{W}}\left\{\left(-\frac{1}{2}+\sin^{2}\theta_{W}\right)\overline{e}_{L}\gamma^{\mu}e_{L}+\sin^{2}\overline{e}_{R}\gamma^{\mu}e_{R}\right\}Z_{\mu}$$
(4)

式(4)から分かるようにZボソンを介する弱い相互作用は、右巻き電子と左巻き電子で違っ

た振る舞いをする。偏極電子は高エネルギー素粒子実験において、この違いが衝突点での反応の様相を大きく変えるのである。そして、無偏極電子ビームでは探索が難しかった実験も、より効率よく行うことができるのである。

素粒子実験において、偏極電子ビームが使用されたスタンフォード加速器センター (SLAC)の電子陽電子リニアコライダー(SLC)におけるワインバーグ角の精密測定では、 その高い能力を発揮した[1]。これは、左巻き電子と右巻き電子での Z ボソン生成断面積 の違いによる非対称度を測定することで、ワインバーグ角を決定することができる。ちなみ に、ワインバーグ角と右巻き・左巻き電子による Z ボソンの生成断面積の非対称度との関 係は次式のように記述できる。

$$A = \frac{\sigma_L - \sigma_R}{\sigma_L + \sigma_R} = \frac{2\left(1 - 4\sin^2\theta_W\right)}{1 + \left(1 - 4\sin^2\theta_W\right)^2}$$
(5)

ここで、 σ_L は左巻き電子による Z ボソンの生成断面積であり、 σ_R は右巻き電子によるものである。また、A はその非対称度である。

SLAC では当初 Bulk-GaAs を用いていたが、1993 年以降名古屋グループが最初に開発した歪み GaAs を採用し、偏極度 60%以上の偏極電子ビームを得ることができた。これによりルミノシティーが 100 倍以上ある LEP と同程度の精度でワインバーグ角を測定することができている。

1-1-2 次期計画における偏極電子源の必要性

I. Super Symmetry

現在、重力を除く3つの相互作用を完全に統一 する理論として、SU(5)大統一理論が最も有力 といわれている。この理論はフェルミオンとボソ ンがパートナーとして存在する超対称性により 素粒子の世界を記述するものである。このパー トナーは超対称性粒子と呼ばれているものであ る。

ミューオンの超対称性粒子であるスミューオン は U(1)ゲージボソンを介して対生成し、その後 すぐにミューオンと最も軽い超対称性粒子 (LSP)に崩壊する。LSPは電荷を持たず安定で



あるため直接検出は難しい。そこで、崩壊の相手であるミューオンの運動量欠損からスミュ ーオンを探し出すことを計画している。

しかし、このとき SU(2)_Lゲージボソンを介して生成する W[±]ボソンによるバックグラウンドにより、観測が困難になる。

そこで、SU(2)_Lと相互作用を起こさない右巻き電子のみを使用すればバックグラウンドは起こらなくなる。これにより、バックグラウンド成分を劇的に減少させ、必要としているスミューオンのシグナルがはっきり判別することが可能となる。

II. Higgs 粒子の探索

ILC 計画では超対称性粒子探索以外にも偏極電子ビームを用いた実験が数多く計画されている。その一つに Higgs 粒子の探索がある。

Higgs 粒子の生成はZボソンが関与する過程とW[±]ボソンが関与する過程の2つが存在す るとされている。 左巻き電子は Z ボソン・W[±]ボソンの両方と相互作用するが、 右巻き電子 はW[±]ボソンとは作用しない。 そのため、 右巻き電子による反応と左巻き電子による反応で Higgs 粒子の生成断面積に偏りが生じることになる[3]。 この偏極非対称度のエネルギー 依存性を測定することで生成したスラカー粒子が Higgs 粒子であるかどうかの判定するこ とができるのである。



図 2. Higgs 粒子生成反応のファインマンダイアグラム。左図はZボゾンを介するとき、 右図はWボソンを介するときの反応

III. ILC 計画

衝突型加速器は大別して、電子・陽電子衝突型加速器とハドロン衝突型加速器に分けら れる。ハドロンを用いるのに比べ電子・陽電子衝突は、基本粒子であるレプトンを用いて おり、それ自体の内部構造を持っていないことから高エネルギー反応の事象を明確に見 ることができる。そのため、電子・陽電子衝突型加速器は新粒子の探索実験や基本相互 作用の研究に対して、非常に有用な実験装置である。また、衝突型の加速器には、円形 加速器(シンクロトロン)と線形加速器(リニアコライダー)がある。現在、円形加速器が主流 として運転されている。しかし、円形加速器では磁場でビーム軌道を曲げるときにシンクロ トロン放射光を出してしまい、それに伴いビームはエネルギーを失ってしまう。このシンクロ トロン放射光による単位時間当たりのエネルギー損失 P は電子ビームのエネルギーを E、 軌道半径をρとすると

$$P = \frac{e^2 c}{6\pi\varepsilon_0} \frac{1}{\rho} \left(\frac{E}{m_e c^2}\right)^4 \tag{6}$$

と書きあらわされる[4][5]。ここで、m。は電子の静止質量、c は光速、E0 は真空中の誘電率 である。式(6)からエネルギー損失を一定にしてエネルギーを増強するには、加速器の軌 道半径をビームエネルギーの2乗に比例して増大させなくてはならない。円形加速器は LEP-2(重心系エネルギー190GeV)において直径 27km となっており、LEP を超えるエネ ルギーを円形加速器で生成することは現実的ではない。一方、線形加速器は原理的にシ ンクロトロン放射を起こさず高エネルギービームを生成することが可能であり、更なるエネ ルギーフロンティアへの可能性を持っている。

単位時間当たりの素粒子反応数は、反応断面積とルミノシティーとの積で決まる。線形 加速器の場合、円形加速器のようにビームを蓄積しておくことはできないため、衝突に使 われたビームは再利用されることはない。また、反応断面積はエネルギーの二乗に反比 例して減少してしまうことから、反応数を稼ぐにはルミノシティーを上げる必要がある。ここ で、線形加速器のルミノシティーL はバンチ当たりの粒子数 N_e (電子), N_p (陽電子)、単位 時間当たりのバンチ衝突回数 f、衝突点における水平および垂直方向ビームサイズ σ_x , σ_y を用いると、次式のように表される。

$$L = \frac{N_e N_p f}{4\pi\sigma_x \sigma_y} \tag{7}$$

ルミノシティーを上げるといっても、ただバンチ当たりの粒子数を増やすだけではだめであ る。衝突点においてバンチ当たりの電荷が大きいと、衝突中に相手のビームが作る磁場 により Beamstrahlung といわれる電磁放射を起こしてエネルギーを損失してしまう。したが って、バンチ当たりの粒子数は制限しなければならなくなる。このため、ILC ではパルスト レイン内に多数のバンチを詰め込むことで衝突回数を増やし、かつ衝突点においてビー ムサイズをナノメートルスケールまで収束することにより要求されるルミノシティーを達成し ようとしている。また、偏極電子源に要求されるビーム構造およびビームパラメータを図 3、に示す[2][7]。中西彊の研究室では、ILC 用の偏極電子源試作機として作成された偏 極電子源2号機(NPES-2)により基礎データを得ており、実用機として偏極電子源3号機 (NPES-3)の開発も済んでいる[8][9]。



1-2 加速器科学以外への応用

1-2-1 電子顕微鏡への応用

I. SP-LEEM(SP-LEED)

低エネルギー電子顕微鏡(LEEM :Low Energy Electron Microscope)にスピン偏極電子 ビームを用いるものを SP-LEEM(Spin-Polarized Low Energy Electron Microscope)という [14]。これは、電子源にスピン偏極電子源を用いて、表面の高分解能磁区観察を可能に する顕微鏡である。

ここで、LEEM とは、測定するサンプルに低速電子線を照射し、その散乱電子を観測する 投影型の電子顕微鏡である。この顕微鏡は実時間観察が可能である。LEEM 像を得るこ とにより回折ならびに干渉コントラストを反映する高分解能像を得ることができ、さまざまな 表面における結晶成長過程や表面反応の解析などが可能となる。また、表面の局所的領 域からの LEED (Low Energy Electron Diffraction)パターンを得ることができ、この領域で の構造解析が可能となる。この顕微鏡は低エネルギー電子を用いるため、TEM や SPM のような原子を見る分解能は得ることができない。しかし、その干渉効果により、結晶成長 を一原子ステップの分解能で鮮明に実時間観測できる。LEEMの場合、数eV~数100eV の電子を試料表面に直入射させる。そして、試料表面からの電子回折波を電子レンズ系 にて後方集光面(BFP: Back Focal Plane)に集光させ、この後方に回折スポットの拡大像 を作りこれを蛍光スクリーン上へ投影する。この面上の回折スポットを選択する事により、 特定された領域である回折条件を満たした画像を選び出すことができる。

この LEEM にスピン偏極電子を用いると、スピンの非対称度に由来する像が得られる。 SP-LEEM である。これによって、磁区の磁化方向を観察することが可能となる。2000年 頃までは SP-LEEM は電子源に Bulk-GaAs を用いており、そのスピン偏極度は 50%以下 である。この磁化方向のコントラストを得るには、スピンの方向を最低でも2方向について 採取した画像を用いる。その2つの画像のコントラストの違いから、磁化方向の情報を浮き 彫りにする。よって、この SP-LEEM では、必要とするスピンの方向は可変でなければなら ない。そのため、スピン偏極電子源と試料の間に、スピンマニピュレータを設置した構造を とる。現行の SP-LEEM ではスピンマニピュレータに電子ビームの移送が90°回転する球 形コンデンサー方式のものが使用されている[15]。

現在は、中西彊、越川孝範、竹田美和らによって偏極度~90%のフォトカソード技術[16] を用いて更なる高性能の SP-LEEM の開発に成功しており、高いスピン偏極度および高 い輝度により、S/N 比の改善、磁区観察の高分解能化、1フレームの測定時間の短縮化 などが図れることが明らかとなった。これらにより高分解能実時間観察の実現がなされて いる。

1-2-2 その他の物性物理への応用

表面の磁気的性質や磁性体のスピン偏極状態密度の観測に、スピン偏極電子エネルギー損失分光(Spin Polarized Electron Energy-Loss Spectroscopy: SPEELS)やスピン偏極 逆光電子分光(Spin Polarized Inverse PhotoEmission Spectroscopy: SPIPES)、スピン偏 極透過電子顕微鏡(Spin Polarized Transmission Electron Microscopy: SP-TEM)がある。 この偏極電子源として、NEA-GaAs 半導体フォトカソードが応用されている[20][21]。

入射電子が試料を構成する原子に衝突するとき、結晶中の電子や結晶格子と相互作用 をしてそのエネルギーを一部失って散乱される。この電子のエネルギーを分光して、微小 領域から元素の定性定量分析や電子状態を解析する手法を電子エネルギー損失分光 法(Electron Energy-Loss Spectroscopy: EELS)という。分析対象となる非弾性散乱は、内 殻電子励起(コア励起 50~2000eV)、価電子の励起によるバンド間遷移(0~10eV)、自 由電子の集団振動によるプラズモン励起(10~50eV)である。TEM や AES に装備されて いる事が多い。分解能を上げる為に電子銃にモノクロメータを使用し、検出器も高感度に したものはHREELSと呼ばれ、表面分子の振動準位やフォノン励起もmeV 単位で測定で きる。この電子線をスピン偏極電子に変えることで、表面のスピンに依存した情報を含ん だスペクトルを得ることが可能となる。これを、スピン偏極電子エネルギー損失分光法 (SPEELS)という。

一方、逆光電子分光法(Inverse PhotoEmission Spectroscopy: IPES)という実験手段は、 物質の電子状態を研究する重要な手段の一つであり、この手法を用いると、特に物質の 非占有電子状態の情報を直接的に得ることができる。その原理は、物質に電子ビームを 入射し、その電子がより低い非占有電子状態に遷移するときに放出される光を検出するこ とによって、非占有電子状態の情報を得るというものである。その中でも、放出される光の エネルギーが真空紫外領域の逆光電子分光法は、物質の表面に非常に敏感なため、物 質の表面領域における電子状態を調べる有力な手段とされている。さらに、入射する電子 にスピン偏極電子を用いると、非占有電子状態の情報を上向きと下向きの2つのスピン状態を分解して得ることができる。これが、スピン偏極逆光電子分光法(Spin Polarized Inverse PhotoEmission Spectra: SPIPES)というものである。

2 NEA-GaAs 型スピン偏極電子の生成原理

2-1 GaAs における偏極電子ビームの生成原理

スピン偏極電子ビームを生成するために、我々は GaAs 系半導体フォトカソードを主に用い ている。半導体フォトカソードとは、半導体に励起光を照射することにより、電子ビームを光 電効果で生成する陰極物質である。フォトカソードによるスピン偏極電子の生成過程は、次 の三つの過程を経て生成される。まず、①円偏光の照射により半導体結晶中にて選択励 起を行い、伝導帯にスピン偏極電子を生成する。その後、励起電子は②表面へ拡散し、③ NEA 表面を介して真空へ放出される。NEA 表面からスピン偏極電子を真空中に取り出す 一連の過程を図 4 に示す。次に、この3つの過程それぞれについて詳しい説明を行うこと とする。



図 4. NEA 表面を用いた場合の3ステップモデルの概要

2-1-1 真空放出課程(NEA 表面について)

高い偏極度を得るには固体中において選択的に励起しなくてはならないため、励起された電子は縮退の分離幅程度のエネルギーしか余分に持つことができない。しかし、真空準位と伝導帯下端とのエネルギー差である電子親和度 χ はバルク GaAs では約 4eV もあり、この状態では真空中に取り出すことはできない。電子を引き出すためには χ <0という状態を作り出さなければならない。この χ <0の状態の表面を負の電子親和性(NEA: Negative Electron Affinity)表面という。NEA表面を作成するために次の手順を踏む。

p 型不純物を高ドープした GaAs 結晶により、表面領域にバンドベンディングを生じさせる。次に、清浄にした GaAs 結晶表面にセシウムと酸素(または NF3)を付加させることにより、一原子層の厚さを持つ電気二重層ポテンシャルを形成させ、真空障壁を下げる。この二つの操作により、加算的に真空準位を下げることができ、NEA 表面を形成することができる。このようにして、電子は真空中に取り出すことが可能となる。この様子について、図 5

に示す。

ここで、NEA表面を形成する際には、その表面は清浄な状態でなくては良質なNEA表面 の作成が困難である。良い表面というのは一概には言えないが、われわれは量子効率 (QE: Quantum Efficiency)を指標にして比較している。量子効率とは、入射光子数に対す る真空中に引き出された電子の数の割合であり、フォトカソードの性能を比較評価するた めに必要な量である。この量は、引き出し電流値 I、励起光パワーP、励起波長λから求め られる量であり、次式で表される。

$$QE = \frac{N_{electron}}{N_{photon}} = \frac{I/e}{P\lambda/hc} = 1.24 \times 10^{-3} \frac{I}{P \cdot \lambda} \qquad : I[nA], P[mW], \lambda[nm]$$
(8)

N_{electron}:引き出し電子数, N_{photon}:入射光子数, p:プランク定数, c:光速, e:素電荷

同じ結晶であれば、その量子効率が高いほど良い NEA 表面ができていると判断する。 我々の研究室では、結晶表面を清浄にするために通常、装置にインストールする前に化 学的に結晶表面の酸化膜を除去する。その後、真空中で加熱することにより清浄表面を 得ている。この他にも、原子状水素を用いて清浄にする方法がある。これは、真空中にお いて水素を原子状態にして GaAs 結晶表面に作用させる。これにより表面にある酸化物、 特にガリウム酸化物を還元反応により除去するものである。原子状水素を作る方法として は、水素分子をプラズマ状態にして原子状態にする方法と、高温のタングステン表面で解 離させる方法がある。この結果、作成した NEA 表面により、偏極電子を真空中に取り出す ことが可能となる。



図 5. エネルギーバンド構造から見た NEA 表面形成の様子

2-1-2 選択励起

GaAs 結晶はジンクブレンド構造を持つⅢ-V族化合物半導体である。この半導体は伝導 帯最下端と価電子帯最上端がΓ点で一致している直接遷移型半導体である。 伝導帯は軌道角運動量 L=0 の s 軌道電子状態が支配的であり、二つのスピン状態が縮 退した状態を取る。一方、価電子帯はL=1のp軌道電子状態をとる。そして価電子帯は、 スピン軌道相互作用が働くことにより、全角運動量 J=3/2 の四つの縮退状態と J=1/2 の二 つの縮退状態が存在することになる。価電子帯の電子が伝導帯に励起され、価電子帯の 電子が無くなったところは正の電荷を持った粒子として振舞う正孔(ホール)となる。この正 孔は、それぞれが取る電子状態により有効質量が違ってくる。四重縮退した J=3/2 で、磁 気量子数 m_i=±3/2 は重い正孔、m_i=±1/2 は軽い正孔に対応する。

電子を偏極した状態に励起するために、円偏光を照射する。その理由は、半導体中で円 偏光を吸収し電子を励起するとき、ヘリシティーを保存することを利用するためである。こ れは、ヘリシティー±1の光子の吸収に対して、励起された電子の角運動量の変化量 Δ J は±1となることを意味する。そして、価電子帯の電子はそれぞれ Clebsch-Gordan 係数で 決まる吸収比で伝導帯へ励起される。いま、光子エネルギーがバンドギャップエネルギー E_gに等しい右円偏光レーザー(ヘリシティー+1)を照射すると、励起される価電子帯準位 は $m_{j=}$ -3/2および $m_{j=}$ -1/2の二つからのみとなる。さらに吸収比は3:1になることから、原理 的には偏極度 50%を得ることとなる。図 6 にその概念図を示す。

ここで、偏極度とは電子スピンがどれだけ偏っているかを表す量であり、右巻き電子数 N_R と左巻き電子数 N_L を用いて、次に示す式で定義される。

$$P = \left| \frac{N_R - N_L}{N_R + N_L} \right| \tag{9}$$



図 6. バルク GaAs における円偏光励起過程におけるスピン選択励起の模式図。バルク GaAs 結晶は価電子帯が縮退しているため、偏極度は原理的に最大で 50%であ る。よって、価電子帯の縮退を解かなければ、偏極度 50%という制限を越え ることができない。我々は、この 50%の壁を突破する(価電子帯の縮退を解 く)方法として、"歪み GaAs フォトカソード"及び"歪み超格子半導体フォ トカソード"の開発を進めてきた。このフォトカソードの開発により、90%近 い高偏極度を実現している。

2-2 歪み超格子結晶

50%の壁を越えるには、図 7 に示すように、価電子帯の縮退を解かなくてはならない。この 方法として、まず結晶に歪みをかける方法を述べ、その後に超格子構造半導体について、 そして最後に歪超格子半導体について説明する。



図 7. 価電子帯の縮退を解いたときの円偏光励起におけるスピン選択励起

2-2-1 歪み結晶

前述のように、50%の壁を越えるには、価電子帯の縮退を解かなくてはならない。この方 法として、まず歪みをかける方法がある。歪みは基板層に格子定数の違う物質を成長させ ることにより格子不整合を起こすことによって得られる。これにより、内部の歪みエネルギ ーは、そのバンド構造に大きく変化をもたらす。これにより、バンドギャップエネルギーを変 化させ、重い正孔と軽い正孔間に分離を生じさせる。

一般に、格子不整合度 0.1%を超える異種接合においては、接合界面に無視できなくなる 欠陥が生ずる。しかし、接合層が非常に薄い状態では、格子不接合度 0.1%を超えても接 合層は歪んだ状態を維持して、界面に欠陥を生じなくなる[22][23]。この基板上に堆積し た成長層の界面部分は、基板の格子定数に接合するように歪む。しかしながら、成長層 の厚みが増えてくると、歪みエネルギーが増加し、ある膜厚になると積層欠陥や転移が発 生してしまう。これにより歪みエネルギーは解放され、エネルギー的に低い安定した状態 へ移る。よって、転移のない歪みのかかった成長層には臨界膜厚が存在する[24][25]。膜 厚 h の面歪みエネルギー密度は

$$\varepsilon_{H} = 2G\left(\frac{1+\nu}{1-\nu}\right)hf^{2}$$
⁽¹⁰⁾

と書き表される。ここで、G はせん断係数、vはポアソン比、f は格子不整合度である。この格子不整合度は、基板・成長層それぞれの格子定数 a_s, a_g を用いて、 $f = (a_s - a_g)/a_s$ となる量である。

次に、歪みによるエネルギーバンド構造の変化量について触れる。歪みによる成長層の

エネルギーバンド幅(伝導帯下端と重い正孔・軽い正孔の重心とのエネルギー差)の変化 は次式で計算される。

$$a\left(2e_{xx} - 2\frac{c_{12}}{c_{11}}e_{xx}\right)$$
(11)

ここで、a は均一圧力による変形によって生じたバンド幅変化を与える変形ポテンシャル(静水圧歪みポテンシャル)であり、第二項は成長方向の歪による変化を表す。ここで、歪みは[100]と[010]にかかっている場合を考えており、各ひずみ量を次のように与えている。

$$e_{xx} = e_{yy} = -e, \quad e_{zz} = \frac{2c_{12}}{c_{11}}e, \quad e_{xy} = e_{yz} = e_{zx} = 0$$

$$c_{11}, c_{12}: 弾性スティッフネス定数$$
(12)



図 8. 歪みによるバンド構造の変化(In_xGa_(1-x)As/InP を例に) 一方、歪みによる重い正孔と軽い正孔の分離幅δ_sは歪み量 e_{xx}を用いて

$$2b\left(e_{xx} + 2\frac{c_{12}}{c_{11}}e_{xx}\right)$$
(13)

と書き表される。ここで、b は正孔エネルギー差に対する変形ポテンシャルである。歪みに よりバンド構造が変化する様子を InGaAs/InP を例にとり、図 8 に示してある。見て分かる ように、圧縮歪みと引っ張り歪みが存在する。これにより、価電子帯の重い正孔、軽い正 孔は分離したときに、どちらが電子エネルギー的に高い方にシフトするかが違ってくること が分かる。Γ点において圧縮歪みのとき重い正孔が、引っ張り歪みのとき軽い正孔が、エ ネルギー的に高いほうへと分離する。

GaAsの場合、b=-1.75eV、 c_{11} =11.8 N/m²、 c_{12} =5.4 N/m²であるので、圧縮歪みを0.5%かけると分離幅 δ_s =34 meVを得ることができる。また、重い正孔が軽い正孔よりも電子エネルギーで見た場合、高いほうヘシフトする。これにより、伝導帯への励起が重い正孔からのみとなり、偏極度80%以上という高い性能を有する電子ビームが生成可能となった[26]。

2-2-2 超格子構造

超格子構造半導体とは、バンド構造の異なる二種類の半導体薄膜層を幾重にも積み上 げた、周期的量子井戸構造を持つ半導体である。この薄膜層はエネルギーバンド構造か ら見た場合、その量子井戸構造により、伝導帯にはミニバンド(サブバンド)が形成される。 また、価電子帯にも重い正孔と軽い正孔のそれぞれが形成した、ミニバンドが存在する。 この価電子帯ミニバンドは、その有効質量の違いにより分離したバンドを作る。図 9 に超 格子構造の三次元的イメージ図と、図 10 に超格子構造によるミニバンド形成の様子をそ れぞれ示す。

超格子におけるエネルギーバンド構造は、クローニッヒ-ペニー (Kronig-Penny) モデルを 解くことで計算できる[27]。いま、超格子層の厚みを、井戸層 L_w, 障壁層 L_Bと置き、その 障壁ポテンシャルの高さを V とすると、シュレディンガー方程式は

$$\frac{d^{2}\phi_{W}(z)}{dz^{2}} + \alpha^{2}\phi_{W}(z) = 0, \quad \alpha^{2} = \frac{2m_{W}E}{\hbar^{2}} \quad \left(0 \le z \le L_{W}\right)$$

$$\frac{d^{2}\phi_{B}(z)}{dz^{2}} + \alpha^{2}\phi_{B}(z) = 0, \quad \beta^{2} = \frac{2m_{B}(V-E)}{\hbar^{2}} \quad \left(-L_{B} \le z \le 0\right)$$
(14)

と書くことができる。ここで ϕ_W, ϕ_B はそれぞれ井戸層,障壁層における波動関数であり、 m_W, m_B はそれぞれの有効質量である。ブロッホの定理より波動関数の関係は

$$\phi(z) = U(z) \exp(ikz)$$

$$U(z) = U(z+L), \quad L = L_w + L_p$$
(15)

と与えられる。これを式(14)に代入し、z=0における連続条件と周期条件から、解が存在するための条件を導くと

$$\cosh(\beta L_{B})\cos(\alpha L_{W}) + \frac{1}{2}\left(\gamma - \frac{1}{\gamma}\right)\sinh(\beta L_{B})\sin(\alpha L_{W}) = \cos kL$$

$$\gamma = \frac{m_{W}\beta}{m_{B}\alpha}$$
(16)

という関係が成り立つ。この式を満たすエネルギーE の範囲が超格子のミニバンド幅を決

めることになる。

実際の超格子構造を持つフォトカソードでは、図 10 に示すように価電子帯ではミニバンドが分離し形成される。これにより、バンドギャップ程度のエネルギーを持つ光子によって励起されるとき、縮退により偏極度の上限が50%に制限されていたものが、その制限を越えることが可能となる。AlGaAs-GaAs 超格子を用いた時のスピン偏極度を図 11 に示す。 偏極度は最大で71.2±7.2%という値を得ており、励起波長 780~800 nmでは重い正孔からのみの励起、700~740 nm においては重い正孔と軽い正孔の両方からの励起が含まれている部分になる。これにより、価電子帯の縮退分離が起こっていることがわかり、また偏極度は50%を越えた値を得ることが可能であることが分かる[28]。



図 10. 超格子構造によるミニバンド形成の様子



 図 11. AlGaAs-GaAs 超格子を用いた時の偏極度スペクトル。横軸に励起波長、縦軸に 偏極度を示してある。結晶は、Be-doped AlGaAs-GaAs 超格子層が 100 nm (GaAs 層: 19.8Å, Al_{0.35}Ga_{0.65}As 層: 31.1Å, 20 pair)、 1µm の Al_{0.35}Ga_{0.65}As 層を介して GaAs バッファー層 50 nm がある構造を持つものである [28]。

2-2-3 歪み超格子におけるスピン偏極電子生成

歪み超格子半導体とは、超格子構造を持つ半導体の超格子層に歪みをかけたものであ る。これは、ヘテロ接合において、格子定数が一致せず不整合が存在するときに、超格子 層は臨界膜厚よりも十分薄いため、その歪みを保持した状態で超格子を形成する。我々 が用いている GaAs-GaAsP 歪み超格子結晶では、GaAs 超格子層(井戸層)にのみ歪み をかける設計になっている。これは、基板層が超格子障壁層と同じものを選択しているた めである。歪みによる縮退の分離と超格子構造によるミニバンドの分離、この二つの効果 を加算的に得ることができる。これにより重い正孔ミニバンドと軽い正孔ミニバンドの分離 幅が大きくでき、高い偏極度を得ることが可能となる。さらに超格子構造をとるため、バンド ギャップに相当するエネルギーで励起をした時、その励起エネルギーにおける結合状態 密度は歪み結晶に比べて大きい。さらに、伝導帯ミニバンドは井戸層の伝導帯底から高 いエネルギーのところに形成される。この二つの効果により、その量子効率は大幅に改善 される。これにより我々は、偏極度~90%かつ量子効率0.5%という高いパフォーマンスを有 するスピン偏極電子源用フォトカソードの開発に成功している[16]。

さらに、AlGaAs/GaAs 歪み超格子や GaAs/GaAsP 歪み超格子における実験では、表面 電荷制限現象を克服することを確認している。これにより、サブナノ秒マルチバンチビーム の生成が可能となっている[29]-[30][31]。



2-2-4 NEA 表面電荷制限現象(SCL effect: Surface Charge Limit effect)

結晶中から電子を引き出すとき、電子は結晶表面まで輸送されてきて真空中に出る。しか し、この過程で電子は表面に来るまでに様々な散乱を受け、エネルギーを失ってしまった りするものもある。この電子は真空中に脱出できなかった場合、結晶表面のバンドベンデ ィング領域に溜まってしまう。溜まった電子はある時間で緩和されるが、それよりも多い数 の電子がくると緩和できずに、表面近傍で電子にとって障壁となるポテンシャルを形成し てしまう。この効果により、大きな電流を引き出そうとするとき、NEA に必要なバンドベンデ ィングの効果が失われてしまい、電流値に限界が生じてくる。これが NEA 表面電荷制限 効果である。図 13 にその概念的モデルを示す。現在、NEA 表面電荷制限効果について は、表面 p 型不純物-高ドーピングの超格子フォトカソードの開発によりナノ秒領域での克 服に成功している。図 14 にダブルバンチビーム生成における NEA 表面電荷制限効果 の克服の様子を示す[29][30]。



 図 14. NPES-II でのダブルバンチビーム生成結果。左図が Thin-GaAs から引き出した時、 右図は GaAs-AlGaAs 超格子から引き出した時のデータ。それぞれにおいて、
 (a)各バンチに対する電荷飽和曲線、(b)レーザー強度を変化させたときの電子 バンチ波形

2-3 NEA 表面の寿命

これまで、NEA 表面を用いることにより、高い偏極度かつ高い量子効率を持つフォトカソードを実現してきた。また、そのビームは低エミッタンスを実現できることが期待されている。しかしながら、この NEA 表面は、真空雰囲気に非常に敏感であり、脆い性質のものである。 そのため、使用するたびに、その表面は劣化し、量子効率は下がってきてしまう。これを、 NEA 表面の寿命問題と呼んでいる。ここで、寿命は、一般に初期の量子効率が 1/e (e:自然対数)の値になる時間τを寿命と定義している。

この劣化の要因としては、真空雰囲気中の不純物の付着による表面汚染とイオンバックボ ンバードメントの二つが考えられている。イオンバックボンバードメントとは、真空中の物質 がイオン化し、そのイオン等がカソード表面に逆流してくる現象のことである。このイオン化 の原因は、引き出した電子ビームや電極間で発生する暗電流がある。また、アノードへの 電子衝突により金属表面からの分子脱離が起こり、これがイオンの発生要因にもなる。よっ て、NEA 表面の劣化を防ぐには、①高電界印加時に発生する暗電流を抑える事と②カソ ード付近の真空を非常に良い状態に保つ事の二つが必要になる。

名古屋大学では70keV スピン偏極電子源(NPES-II)において、暗電流の削減によるNEA 寿命の改善が確認されている[29][34]。図 15 に測定された寿命測定の結果を示す[29]。 この他に、NEA 表面の寿命については、米国 Thomas Jefferson National Accerelator Facillity (Jefferson Lab)の CEBAF (Continuous Electron Beam Accerelator Facility) -100kV 偏極電子源では、2.5mA 運転(9C/h, 216C/week)において QE が 1/e に低下するま でに引き出し電荷量 500C を達成している[13]。さらに我々は、電極材質としてステンレス鋼、 銅、モリブデン、チタンを試験し、陰極としてはモリブデン、陽極としてはチタンが良い組み 合わせあることを明らかにした[34]。これにより、モリブデン陰極-チタン陽極の組み合わせ は、200keV スピン偏極電子源 (NPES-III, フォトカソード印加電界: 3.0MV/m)に利用され、 暗電流を 1nA 以下に抑えることに成功している。



図 15. 量子効率の低下の時間経過による様子。印加電圧 80kV での寿命測定結果。左図 は引き出し電流~2mA、右図は引き出し電流~10mA のデータ。開発当初の電 極(電界放出暗電流 2500nA) によるデータを○、現在の電極(電界放出電流 1nA) によるデータを●で表している。

2-4 偏極度スペクトルにおける減偏極効果

スピン偏極電子の生成は、まず①円偏光による選択励起を行い伝導体へ偏極電子を励起 する。そして②励起された電子は拡散により表面へと到達し、③真空中へと脱出することに より電子ビームとして取り出される。この拡散過程において、スピン偏極電子はスピンフリッ プを起こし、減偏極をおこしてしまう[50]。p型 GaAs 半導体では、伝導帯底に励起された電 子の場合、主にホール(正孔)との散乱を繰り返し表面まで拡散してくる。一方、伝導帯底よ り高いエネルギー状態に励起された電子(熱い電子; hot-electron)の場合は、フォノン散乱 やイオン化不純物との散乱が主になる。これらの散乱により、それぞれの電子は減偏極を 起こしながら表面まで到達する。前者は Bir-Aronov-Pikus (BAP)機構により説明されるも ので、後者は D'yakonov-Perel'(DP)機構として知られる効果である[51][52]。NEA 表面を 用いた場合、偏極電子は半導体内部の現象をほぼ反映した状態で真空中へと引き出され る。

I. p-GaAs における半導体中ドリフト時の減偏極効果

放出電子の結晶内部での減偏極効果を考慮するために、まずドリフト時における半導体 内部での散乱による減偏極効果(スピンフリップ)の励起エネルギー依存について述べ る。

p型 GaAs におけるドリフト時の減偏極は、DP 機構とBAP 機構によって主に説明される。 低エネルギー領域(<30meV)においては、BAP 機構が主な減偏極効果をもたらし、逆に 高いエネルギー領域における電子は DP 機構が主な要因となる[53]。この BAP 機構はホ ールによる散乱が減偏極に寄与する相互作用であるとした理論である。一方、DP 機構は GaAs の持つ非対称性から起因するフォノン散乱やイオン化不純物散乱が主な要因と考えるものである。

減偏極効果はスピン緩和時間により記述、観測される。それぞれのスピン緩和機構(BAP 機構、DP 機構)におけるスピン緩和時間は、次のように表される。

BAP機構におけるスピン緩和時間では

$$\frac{1}{\tau_s^{BAP}} = \frac{3}{\tau_0} \frac{v_e}{v_B} \frac{k_B T}{\varepsilon_F} \left| \varphi(0) \right|^4 N_p a_B^3$$
(17)

と記述される[53]。ここで、 $v_B = \hbar/\varepsilon_e a_B$ は励起子ボーア速度であり、 $v_e = (3k_B T / m_e^*)^{1/2}$ は 電子の熱速度である。 τ_0 は励起子の基底状態の交換分離エネルギー Δ_{ex} から計算される ものである。 $|\varphi(0)|^2$ はゾンマーフェルト因子、 N_p は自由ホール密度、 a_B はボーア半径で ある。P型 GaAs 半導体では正孔によって電子が散乱されるときに交換相互作用が働くた めに電子のスピン緩和が引き起こされる。この時の温度依存性は、スピン緩和時間の逆数 (スピン緩和散乱の頻度)は温度と p 型ドープ濃度に比例して大きくなっていく。いま $E_k = 3k_BT/2 = m_e v_e^2/2$ とすると、エネルギー依存はスピン緩和時間の逆数に対して 3/2 乗で比例することが分かる。

DP 機構において、そのスピン緩和時間は

$$\frac{1}{\tau_s^{DP}} = Q\alpha_c^2 \frac{(k_B T)^3}{\hbar^3 E_g} \tau_p \Box Q\alpha_c^2 \frac{\varepsilon_k^3}{\hbar^3 E_g} \tau_p$$
(18)

と記述される[50]。ここで、T。は運動量緩和時間であり、E。はバンドギャップエネルギー、

Qは作用している散乱過程に依存する定数である。 α は伝導帯電子のスピンハミルトニアンにおける k³ 項から特徴付けられるスピンスプリットパラメータである。GaAs のようなIII-V族化合物半導体では、その非対称性から k=0 以外での伝導帯のスピン分離を引き起こる。この分離は伝導帯電子のスピンハミルトニアン中に k³ 項として表現される。この分離は 電子スピンの歳差運動を引き起こす有効磁場が結晶中に存在しているのと同様の効果を もたらす項である。式(18)より、スピン緩和時間の逆数は電子のエネルギー E_k の三乗と運動量緩和時間 τ_p に比例することがわかる。いずれの機構も電子のエネルギー ε が大きく なるにつれて、スピン緩和時間 τ_s が小さくなることが分かる。それは、 ε が大きくなると伴に 減偏極効果が大きくなってくるということを意味している。

II. NEA 表面を用いて生成したスピン偏極電子のスピン偏極度スペクトル

まず、内部での励起と拡散により表面に到達した電子の偏極度スペクトルについて見積も りを行い、そのエネルギー依存の傾向について言及していく。 光励起によって生成される電子のスピン偏極について考える。バルクGaAs中で励起直後

の偏極度を P_i とすると、スピン緩和距離 λ_s 、励起電子の拡散距離 λ_{tife} 、円偏光励起した電子数 $N_{th}(x)$ を用いると、表面まで到達した電子の偏極度Pは

$$P = \frac{\int_{0}^{d} P_{i} \exp\left(-x/\lambda_{s}\right) \cdot N_{ab}(x) \cdot \exp\left(-x/\lambda_{life}\right) \cdot dx}{\int_{0}^{d} N_{ab}(x) \cdot \exp\left(-x/\lambda_{life}\right) \cdot dx}$$
(19)

と記述できる。ここで、吸収係数 α から $N_{ab}(x) = N_{ab0} \exp(-\alpha x)$ 、拡散係数Dとスピン緩和時間 τ_s から $\lambda_s = \sqrt{D\tau_s}$ 、 $\lambda_{life} = \sqrt{D\tau_{life}}$ とすると

$$P = P_{i} \frac{\int_{0}^{d} \exp\left(-x/\sqrt{D\tau_{s}}\right) \cdot N_{ab0} \exp\left(-\alpha x\right) \cdot \exp\left(-x/\sqrt{D\tau_{life}}\right) \cdot dx}{\int_{0}^{d} N_{ab0} \exp\left(-\alpha x\right) \cdot \exp\left(-x/\sqrt{D\tau_{life}}\right) \cdot dx}$$

$$= P_{i} \frac{\alpha + 1/\sqrt{D\tau_{life}}}{\alpha + 1/\sqrt{D\tau_{life}}} \cdot \frac{1 - \exp\left\{-\left(\alpha + 1/\sqrt{D\tau_{life}} + 1/\sqrt{D\tau_{s}}\right)d\right\}}{1 - \exp\left\{-\left(\alpha + 1/\sqrt{D\tau_{life}}\right)d\right\}}$$
(20)

ここで、 α^{-1} 、 $\sqrt{D\tau_s}$ 、 $\sqrt{D\tau_{life}}$ は、それぞれ基板の厚みdに比べて十分小さいときを考えられるので式 (20)は

$$P = P_i \frac{\alpha + 1/\sqrt{D\tau_{life}}}{\alpha + 1/\sqrt{D\tau_{life}} + 1/\sqrt{D\tau_s}}$$
(21)

と書き改めることができる。 いま、電子のエネルギー ε に対する依存を考えると、 $\alpha \to \alpha(\varepsilon)$ 、 $\tau_s \to \tau_s(\varepsilon)$ とし、拡散定 数は運動量緩和時間 τ_p を用いて $D \to D(\varepsilon)$ (= $k_BT \cdot \tau_p(\varepsilon)/m_e^*$)とすると

$$P(\varepsilon) = P_i(\varepsilon) \frac{\alpha(\varepsilon) + 1/\sqrt{D(\varepsilon)\tau_{life}(\varepsilon)}}{\alpha(\varepsilon) + 1/\sqrt{D(\varepsilon)\tau_{life}(\varepsilon)} + 1/\sqrt{D(\varepsilon)\tau_s(\varepsilon)}}$$
(22)

となる。

運動量緩和時間 τ_p は、Bulk-GaAs においては、イオン化不純物散乱と LO フォノン散乱が支配的に効くため、それぞれの緩和時間を用いて次のように書ける。

$$\frac{1}{\tau_{p}} = \frac{1}{\tau_{imp}} + \frac{1}{\tau_{LO}} + \frac{1}{\tau_{ela}}$$
(23)

特に、励起エネルギー1.6eV 以上のエネルギー部分を取り扱う場合、LO フォノン散乱 ($\hbar\omega_{Lo}$] 36 meV)による項が大きく効く、この散乱による運動量緩和時間のエネルギー依存に関し 存は $\tau_p \approx \tau_{p0} \varepsilon^{-\nu}$ とすることができる[46][48][50]。スピン緩和時間のエネルギー依存に関し ては、p型GaAs(Zn-doped 2×10¹⁹ cm⁻³)で励起エネルギー1.6eV以上の領域では、DP機 構が主たる効果であり、そのスピン緩和時時間は式(18)より表される。

いま NEA 表面を用いた場合を考えると、 $\tau_{life} >> \tau_p$ から $\tau_{life} = \tau_{re}$ (再結合時間)とし、エネ

ルギーに対して一定とできる。更に、 $\tau_p \ge \tau_s$ も緩和によって τ_{life} に比べて十分に短い。した

がって、励起後に拡散してくるまでには十分格子温度に達しているため、そのエネルギー は ε 3k_BT/2 となり、拡散定数(運動量緩和時間)とスピン緩和時間も一定として扱うこと ができる。このように、高いエネルギー状態の電子は、脱出時間に対して十分短い時間で 格子温度に緩和するため、励起波長による効果は P_i(ε) に含むことができる。

高いエネルギーに励起された電子スピン偏極度の変化量は、エネルギー緩和時間 τ_{ε} を 用いて

$$dP = -\frac{P}{\tau_s}dt = -\frac{P}{\tau_s}\left(\tau_E \frac{d\varepsilon}{\varepsilon}\right)$$
(24)

となる。いま、エネルギー状態がをかららなっと緩和した時の偏極度は

$$P(\varepsilon_1) = P(\varepsilon_0) \exp\left(-\int_{\varepsilon_0}^{\varepsilon_1} \frac{\tau_E}{\tau_s} \frac{d\varepsilon}{\varepsilon}\right)$$
(25)

となる。ここで、それぞれの緩和時間を300Kのエネルギーを基準に記述すると次式のようになる。

$$\frac{1}{\tau_s(\varepsilon)} = \frac{1}{\tau_s(\varepsilon_{th})} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{th}}\right)^{3+\nu}, \quad \frac{1}{\tau_E(\varepsilon)} = \frac{1}{\tau_E(\varepsilon_{th})} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{th}}\right)^n$$
(26)

これにより、式 (25)の積分を実行すると

$$P(\varepsilon_1) = P(\varepsilon_0) \exp\left(-\frac{\tau_{\varepsilon}(\varepsilon_{th})}{\tau_{\varepsilon}(\varepsilon_{th})} \frac{\varepsilon_0^{3+\nu-n} - \varepsilon_1^{3+\nu-n}}{(3+\nu-n)\varepsilon_{th}^{3+\nu-n}}\right)$$
(27)

となる。LO フォノン散乱の場合、v = -0.5, n = 0.5 となり、さらに散乱による緩和後のエネ ルギーは格子温度のエネルギー $\varepsilon_1 = \varepsilon_n$ まで低下しているものとすると

$$P(\varepsilon_{th}) = P(\varepsilon_0) \exp\left\{-\frac{1}{2} \frac{\tau_E(\varepsilon_{th})}{\tau_s(\varepsilon_{th})} \left(\left(\varepsilon_0 / \varepsilon_{th}\right)^2 - 1\right)\right\}$$
(28)

偏極度の式(22)の $P_i(\varepsilon)$ に式(28)を代入し、吸収係数を $\alpha(\varepsilon) \approx \alpha_0 \varepsilon^{1/2}$ とすると、次のように記述される。

$$P(\varepsilon) = P_{i} \frac{\alpha_{0} \cdot \varepsilon^{1/2} + 1/\sqrt{D\tau_{life}}}{\alpha_{0} \cdot \varepsilon^{1/2} + 1/\sqrt{D\tau_{life}} + 1/\sqrt{D\tau_{s}}} \exp\left\{-\frac{1}{2} \frac{\tau_{E}(\varepsilon_{th})}{\tau_{s}(\varepsilon_{th})} \left((\varepsilon/\varepsilon_{th})^{2} - 1\right)\right\}$$
(29)

いま、GaAs 伝導帯における電子の有効質量 $m_e^* = 0.067 \cdot m_e$ 、300K における GaAs のバン ドギャップ $E_s = 1.425 \ eV$ 、格子温度 $T = 300 \ K$ とする[43]。また実験値を用いて、p型 GaAs の再結合時間を $\tau_r = 96 \ ps$ 、 $T = 300 \ K$ におけるスピン緩和時間 $\tau_s = 85 \ ps$ 、エネ ルギー緩和時間 $\tau_E \Box 0.4 \ ps$ とし、運動量緩和過程が LO フォノン散乱であるとすると $v = 0.5 \ bar a \ [18][46][54]$ 。吸収係数については Ref.[55]のデータより、 $\alpha = 10^6 \sqrt{\varepsilon - E_s} \ (m^{-1}) \ bar a \ contract \ contract \ contract \ eV$ である。図 16 に導いた式 (29)を用いた数値計算結果を示す。この結果は、初期偏極度 $P_i = 0.5 \ bar a \ contract \ con$



3 実際の装置とその構成(加速器用電子源と電子顕微鏡用電子源

を例に)

3-1 加速器用 70keV スピン偏極電子源装置

70keV スピン偏極電子源(偏極電子源2号機:NPES-II)は、リニアコライダー計画(ILC) 用の偏極電子源試作機として作成された装置である[29]。これは、70keV 電子ビームのス ピン偏極度測定、サブナノ秒マルチバンチビーム等の時間構造測定が可能な装置であ る。70keV スピン偏極電子源は大きく分けて、電子銃部分、ビーム移送系部分とスピン偏 極度測定の三つから構成されている。図 17 に 70keV スピン偏極電子源の全体図を示 す。



図 17.70keV スピン偏極電子源の全体図。

電子銃は、NEAフォトカソードを用いる直流型電子銃である。そのエネルギーは70keVを 安定に運転することができる。また、表面電荷制限現象の測定が可能な電流を引き出せ る設計となっている。移送系は、ビームを偏極度測定装置に導く役割と、真空、さらにビームの時間構造の観測する部分を有している。偏極度測定系は、Wien-filterと言われるスピン回転器とMott 散乱を利用したスピン偏極度測定装置からなる。 次に、それぞれ3つの部分について説明する。

3-1-1 電子銃部分

I. 電極

NEA 表面寿命問題を引き起こす電界放出暗電流を低減するため、電極形状は最大電界 強度をできるだけ低い値になるよう設計されている。-70kV 印加時にてフォトカソード表面 に約 0.6MV/m、カソード電極表面での最大電界強度 3.5MV/m という値になっている。そ の作成において電極材料は、炭素含有量が少なく真空特性の良い SUS316L ステンレス 鋼を使用している。また、その電極表面は電解複合研磨を施したのち、超純粋煮沸洗浄 を行い表面に付着した不純物を取り除く処理を行っている。その後、電極はカソードサポ ートチューブ先端に装着して使用している。

これにより、現在使用している電極では-80kV において電界放出暗電流を 1nA に下げる ことに成功している。またこの結果、NEA の寿命を引き伸ばすことにも成功した。図 15 に 電界放出暗電流が多かったときの寿命と、1nA に抑えたときの寿命を比較したグラフを示 してある。

II. 高電圧系

電圧は、アノード電極がグランド 0V であり、カソード電極側に負の DC 高電圧がかかる。 そして、カソード-アノード間は長さ 360mm のセラミックにより絶縁されており、 triple-junction 部分(真空(大気)、金属、セラミックの三つが交わる点)はコロナドームによ り高電界がかからないようにしている。また、セラミック全体は絶縁タンクに納められる構造 になっており、その中に1気圧の乾燥窒素を充填する。高電圧は、-100kV まで出力できる 電源より高圧ケーブルおよび高電圧導入ブッシングにより印加される。

III. NEA 表面活性化

結晶ホルダーの大気側より導入されるヒーターにより、約 550℃から 600℃の加熱洗浄を 行い、結晶表面を清浄にする。室温まで冷却したのちマニピュレーターにより Cs ディスペ ンサーを結晶前面に挿入し、Cs を供給する。また、酸素は高純度酸素(純度 99.9999%) をリークバルブを介して真空へと導入される。この Cs と酸素により NEA 表面を作成する。



図 18.70 kV スピン偏極電子源(NPES-II) 電子銃部。

3-1-2 移送系

移送系は、電子銃部で取り出した電子ビームを偏極度測定装置まで輸送するための部分 である。移送系は、差動排気ポンプ、ビームを効率よく輸送するためのソレノイドレンズと 偏向電磁石および軌道補正用電磁石、ビーム位置とサイズをモニターするためのスクリー ンモニター、ビーム電流値を測定するための Faraday カップから構成されている。

本装置の偏極度測定装置はホルムバール上に金を蒸着した金箔ターゲットと半導体検出 器を使用しておりベーキングできないことから、移送系は真空度が 10⁻⁸~10⁻⁷ Torr と電子 銃部分に比べ一桁から二桁真空度が悪い。この状態で電子銃の真空度を~10⁻⁹ Torr に 保つために、電子銃と移送系の結合部に差動排気用のポンプを設けてある。

電子ビームは偏向電磁石によって90°曲げられる。この偏向電磁石部分の真空チェンバーにはビューポートが付いており、そのポートよりフォトカソード励起用円偏光レーザーが導かれる。収束用のソレノイドレンズは、フォトカソードから距離 230mm(電子銃出口)、630mm(偏向電磁石入口)、1070mm(偏向電磁石出口)の位置と、Wien フィルターの前

の合計四つ設置されている。移送パラメータを調整するために電子ビーム位置とサイズを モニターするスクリーンモニターは、Faraday カップの後部と Mott 偏極度測定器の入り口 の二箇所に設けてある。これは、マニピュレーターにより蛍光板(デマルケスト:アルミナ蛍 光体)をビームラインに挿入して、電子ビームによる発光を CCD カメラでモニターするもの である。ここで、Faraday カップはマルチバンチ電子ビームの時間構造を測定するための カレントモニターである。



図 19. 移送系および偏極度測定系の構成図

3-1-3 偏極度測定系

電子銃から引き出された偏極電子ビームは、移送系を通って偏極度測定系に輸送され る。測定系では初めに Wien フィルターを通過後、Mott 偏極度測定装置に入る。 Mott 散乱を利用した偏極度測定では、金箔ターゲットを用いる。偏極電子を金箔ターゲッ トに衝突し散乱を起こさせる時、電子のスピンはビーム軌道に対し垂直でなければならな い。電子銃を出た偏極電子のスピンの向きは、進行方向に対して平行または反平行の状 態である。このため、Wien フィルターを用いてスピン方向を進行方向に対し 90 度回転さ

せる。この電磁場中の電子スピンの運動は Thomas-BMT 方程式により記述される[40]。

$$\Omega = \frac{d\phi}{dt} = \frac{e}{2m_e c} \left[\frac{\vec{n} \cdot \vec{E}}{\beta} \left\{ \left(g - 2 \right) - g / \gamma^2 \right\} + \vec{n} \cdot \left(\vec{p} \times \vec{B} \right) \left(g - 2 \right) \right]$$
(30)

- **p**: 運動量方向の単位ベクトル
- n: 運動量方向に垂直な単位ベクトル
- Ω:角速度
- ϕ : 偏極ベクトル \vec{P} と運動量ベクトル \vec{p} の間の成す角, $\cos\phi = (\vec{P} \cdot \vec{p})/|\vec{p}|$

Wien フィルターは、ビーム軌道と垂直な二つの直行軸にローレンツ力が 0 となるよう電場 と磁場を同時にかけ、電子スピンを回転させる装置である。図 20 に電子銃から Mott 偏極 度測定装置までの電子スピンの様子を示す。この電子スピンの回転を行った後、Mott 偏極度測定器に入射し測定を行う。Lorentz 力が0となる条件 $\vec{E} = -\vec{v} \times \vec{B}$ からWien フィルターにおける角速度Ωは

$$\Omega = \frac{ge}{2m_e \gamma^2} B \tag{31}$$

となる。ここで g は 2 から 1000 分の1程度しか変わらないことを用いた。よって、Wien フィ ルターにおいてスピンを 90°回転させるための磁場の条件は

$$\frac{\pi}{2} = \int \Omega dt = \frac{ge}{2m_e \gamma^2} \beta c \int B dz$$
(32)

より

$$\int Bdz = \frac{\pi m_e c \beta \gamma^2}{ge}$$
(33)

となる。

実際にはWien-Filterにおいて、中心磁場51Gauss (B_x=8.4I, I=6.1A)、電場7.2MV/m(V= ±7.2kV, gap=20mm)を印加して70keV 電子のスピンを90°回転できる。



図 20. 電子銃から Mott 偏極度測定器までのスピンの運動。

I. Mott 散乱を用いたスピン偏極度測定原理

電子ビームのスピン偏極度を測定する方法としては

- ① Compton 散乱(電子-光子散乱)
- ② Møller 散乱(電子-電子散乱)
- ③ Mott 散乱(電子-原子核散乱)

の三つが上げられる。これらの散乱は電子のスピンに依存する散乱断面積をもち、非対称度を生じさせる。この非対称度を用いれば偏極度を測定することが可能となる。70keVスピン偏極電子源での偏極度測定は、比較的低エネルギーでも散乱を起こす Mott 散乱を利用している。

Mott 散乱は、原子核の Coulomb ポテンシャルによる散乱にスピン軌道相互作用ポテンシ

ャルの効果を考えた散乱である。電子が Coulomb 相互作用により電子-原子核散乱を起こしたとき、電子の静止系では原子核は図 21 のように電子の周りを回転しているようになる。この原子核の回転運動により磁場 Bが発生し、電子の磁気モーメント uと相互作用を起こす。この相互作用はスピン軌道相互作用という。スピン軌道相互作用ポテンシャル

 V_{LS} は、原子核が作るポテンシャル V_{C} 、角運動量 $\overline{l}(=\vec{r} \times \vec{p}_{c})$ 、電子スピン sとすると

$$V_{LS} = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} = \frac{1}{2m_{c}^{2}c^{2}r} \frac{dV_{c}(r)}{dr} (\vec{l} \cdot \vec{s})$$
(34)

となる[41]。これから、電子は軌道角運動量の向き、すなわち散乱方向によって異なる相互作用を受け、散乱断面積に左右非対称度が現れる。スピン軌道相互作用はスピンが軌道面に垂直に入ってきたとき最大になる。このため、スピン方向をWienフィルターにより横偏極に変換している。また、このポテンシャルは dV_e(r)/dr に比例しr に反比例する。したがって、原子番号が大きい原子核ほど、また原子核近くを通過する後方散乱電子ほど非対称度が大きくなることが分かる。このことから、ターゲットには薄膜が作りやすく原子番号の大きい金が選択されている。



図 21. Mott 散乱の概念図

測定される左右対称度Aは左(右)の検出器に入ってくる電子数 $N_L(N_R)$ とすると、次式で表される。

$$A = \frac{N_R - N_L}{N_R + N_L} \tag{35}$$

左右非対称度 Aと偏極度 P は、Sherman 関数といわれる散乱角 θ に依存する量 $S(\theta)$ に よって

$$A = P \cdot S(\theta) \tag{36}$$

という関係で表される。Sherman 関数は数値計算がされており、S. R. Lin が行った電子雲

の原子核遮蔽効果を考慮した計算が良く用いられている。

II. Mott 偏極度測定装置

測定器は、入射コリメーター、金ターゲット、ビームダンパー、散乱電子検出器により構成 されている。図 22 に 70keV スピン偏極電子源の Mott 偏極度測定装置の構造を示す。 金ターゲットに再現性良く入射し、かつターゲット以外で散乱しないように、ターゲットの 20mm 手前には口径 1mm 長さ 90mm のアルミニウム製コリメーターを設置してある。金タ ーゲットには、ホルムバール薄膜上に蒸着した直径 5mm の金箔を用いている。 120°方向に後方散乱した電子をカウントするために、シリコン半導体検出器を真空チェ ンバー内部に設置してある。検出の角度分解能を上げるために検出器前に孔径 1mm の スリットをおき、さらに 120°方向以外の散乱電子を除去するための直径 5mm のシールド が設けられている。この半導体検出器に入った電子の信号はプレアンプにより増幅し、そ の後リニアアンプを通したのち PHA(Pulse Hight Analyzer)によりデータとして取り込まれ る。

散乱電子のカウント数は、 PHA で取り込まれたエネル ギースペクトルより、弾性散 乱した電子のGauss分布と非 弾性散乱した電子やX線が 作るバックグラウンドを分離 することにより求められる。こ こで測定した左右非対称度 には、装置自身のもつ非対 称度が含まれる。これは、検 出器の効率およびその立体 角の差と、ビーム入射軸のず れ、ターゲットの膜厚不均一



図 22. Mott 偏極度測定器断面図

性によるものである。GaAs 系フォトカソードの偏極電子は、円偏光のヘリシティを反転させても偏極度の絶対値とビーム軌道は変わらないことから、左右それぞれの円偏光に対する検出器の係数を求めれば装置の非対称度を取り除くことができる。これにより左右非対称度を求めることができ、この非対称度と装置の実効的な Sherman 関数より、その偏極度は決定される。



図 23. 検出器信号をPHAで測定したときの70keVの散乱電子のエネルギースペクトル。 横軸のチャンネル数が散乱電子のエネルギーに対応している。

Ⅲ. データ解析

Mott 偏極度測定装置において得られる信号は、図 23 に示すエネルギースペクトルであ る。データ解析は KEK-名古屋大学のグループが開発した解析プログラム(POLANL)を 元に、HP-VEE(Hewlett-Packerd 社製計測プログラミングソフト、現行ソフト: Agilent VEE) 上で動作するように作成した Polanl2.veeを使用して行った。得られる信号には、弾性散乱 した電子による信号成分と、非弾性散乱やX線などによるバックグラウンド成分が混在した 状態で PHA に取得される。フェルミ関数をバックグラウンドの関数とし、弾性散乱の信号 成分にガウス分布関数を用いて最小二乗フィッティングを行い、バックグラウンド成分を差 し引いた成分の積分量をカウント数として解析に用いている。

ここで、実際のターゲットにおける電子散乱は、有限の膜厚をもつ金箔を用いるため多重 散乱の効果を含んでいる。そのため左右非対称度にターゲットの厚みに依存した関係が 生じる。偏極度 Pは、一回の Mott 散乱による Sherman 関数 S_0 と膜厚 t=0 のときの非対称 度 A_0 (= A(0)) により

$$P = S_0 A_0 \tag{37}$$

と求められる。しかし、計測される非対称度 A(t) は有限の膜厚を持つターゲットを用いる ため、その実効 Sherman 関数は先の偏極度を満たす S_{eff}(t) という値をとる。 膜厚が十分 薄い場合、次式に示すように、 膜厚に比例する関数で表すことができることが実験的に分 かっている。

$$\frac{1}{A(t)} = \frac{1}{A_0} (1 + \alpha t)$$
(38)

これより、実効 Sherman 関数 $S_{eff}(t)$ は
$$S_{eff}(t) = S_0 \frac{A(t)}{A_0} = \frac{S_0}{1 + \alpha t}$$
(39)

と与えられる。

70keV における Mott 偏極度測定装置の実効 Sherman 関数は、ターゲット膜厚 76.6±2nm の金箔を用いた場合 0.216±0.011 である。

3-2 SPLEEM 用スピン偏極電子源(透過光型光陰極による高輝度化)

加速器用スピン偏極電子源では、大電流、低エミッタンスのパルス電子線が要求 されていたのに対して、電子顕微鏡用のスピン偏極電子源では高い輝度が要求され る。これに応えるために、電子放出スポットを極小化できる工夫が盛込まれている。 図 24 に、SPLEEM 用に開発したスピン偏極電子源とスピンマニピュレータを含む SPLEEM 試料照射系の全体構成を示す。



図 24. SPLEEM 用に開発されたスピン偏極電子源と照射系の構成

まず、半導体フォトカソードに出来る限り光学レンズを近づけることで、短焦点 レンズを配置し大きな NA を持ってレーザーを集光することを可能とすることが 必要である。このため、半導体フォトカソードのレーザー照射方式を、これまでの 正面照射型から裏面照射型に変更した。このため半導体フォトカソードも、活性層 以外で励起光の吸収が起きないように、エネルギーバンドギャップが活性層の励起 エネルギーよりも大きな物質で構成されたものが開発された[56]。これにより、裏 面近くにレンズを配置することが可能となり、そのスポットサイズは波長 800 nm に対して 1.4μm@FWHM となり、従来型の 1/100 のサイズにすることができてい る。この結果、我々の SPLEEM 用スピン偏極電子源では、ソース電流 16 μ A、レ ーザースポット径 1.5 μ m、加速電圧 20keV において還元輝度おおよそ 1.0× 10⁷(A/m²/sr/V)を得ることに成功している[57]。さらに、この電子源は大阪電気通信 大学の SPLEEM との結合させ、高いコントラスト比の SPLEEM 像の取得に成功し ていおり、その高い偏極度と高輝度の相乗効果により 0.04 秒の露光時間でも磁区 構造の観察を可能とした。これまで不可能であった実時間観察が SPLEEM 像取得 において実現されている。(この成果のうちフォトカソードの成果については本書 「高輝度・高スピン偏極用フォトカソードの開発」(竹田美和 著)の項、SPLEEM としての成果については本書の「スピン偏極低エネルギー顕微鏡(SPLEEM)」(越 川孝範 著)の項を参照)。これにより、磁性薄膜の成長過程におけるスピンダイナ ミクスの解明が可能となり、スピン物性に対して大きな貢献が期待される。

Reference

- [1] SLD Collaboration: Nucl. Phys. Proc. Suppl. **37** B (1994) 23.
- [2] GLC group: GLC Project Report (2003).
- [3] M. Dubini et al: "Polarization Asymmetry and the Higgs Boson Production Mechanisms", hep-ph/9603319.
- [4] 亀井亨, 木原元央: "加速器科学", (丸善株式会社, 1993).
- [5] J. D. Jackson: "電磁気学 下", (吉岡書店, 1994).
- [6] Symmetry, (A joint Fermilab/SLAC publication, Batavia, USA, 2006) Vol. 03, Issue 02.
- [7] The ILC Global Design Effort, Baseline Configuration Document (2006).
- [8] 渡川和晃: 博士論文 "超格子半導体におけるナノ秒マルチバンチ偏極電子ビームの 生成", (1998).
- [9] 和田公路: 修士論文 "200kV スピン偏極電子ビーム源の開発", (1998).
- [10] J. Arthur: Review of Scientific Instruments, 73 (2002) 1393.
- [11] T. Shintake, et al.: Proceedings of SPIE, 4500 (2001) 12.
- [12] Study Report on the Future Light Source at Photon Factory, KEK, March 2003.
- [13] I. Ben-Zvi, I. V. Bazarov: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 557 (2006) 337.
- [14] R. Zdyb et al.: Surf. Interface. Anal. 37 (2004) 239.
- [15] T. Duden and E. Bauer: Rev. Sci. Instrum. 66 4 (1995) 2861.
- [16] T. Nishitani, et al.: J. Appl. Phys. 97 (2005) 094907.
- [17] W. Wulfhekel and J. Kirschner: Appl. Phys. Lett. Vol. 75 No. 13 (1999) 1944.
- [18] R. Shinohara et al.: Jpn. J. Appl. Phys. 39 (2000) 7093.
- [19] T. Kohashi and K. Koike: Jpn. J. Appl. Phys. 40 (2001) 1264.
- [20] J. Kirschner, D. Rebenstoff and H. Ibach: Phys. Rev. Lett. 53 (1984) 698.
- [21] J. Unguris et al.: Phys. Rev. Lett. 49 (1982) 1047.
- [22] F. C. Frank and J. H. van der Merwe: Proc. R. Soc. London, Ser. A 198 (1949) 216.
- [23] J. H. van der Merwe: J. Appl. Phys. 24 (1963) 117.
- [24] J. W. Mathews and A. E. Blakeslee: J. Cryst. Growth, 27 (1974) 118.
- [25] R. People and J.C. Bean: Appl. Phys. Lett., 47 (1985) 322.
- [26] T. Nakanishi et al.: Phys. Lett. A 158 (1991) 345.
- [27] G. Bastard: Phys. Rev. B 24 (1981) 5693.
- [28] T. Omori et al.: Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 3294.
- [29] K. Togawa et al.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 414 (1998) 431.
- [30] K. Togawa et al.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 455 (2000) 118.
- [31] S. Tanaka et al.: J. Appl. Phys. 95 (2004) 551.

- [32] S. Pastuszka et al.: J. Appl. Phys. 88 (2000) 6788.
- [33] K. Flottmann: DESY-TESLA-FEL-97 (1997) p 7.
- [34] F. Furuta et al.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 538 (2005) 33.
- [35] R. H. Fowler and Nordheim: Proc. R. Soc. London, Ser. A 119 (1928) 173.
- [36] T. Kawasaki, et al.: Appl. Phys. Lett. Vol. 76 No. 10 (2000) 1342.
- [37] O. E. Tereshchenko, S. I. Chikichev and A. S. Terekhov: Appl. Surf. Sci. 142 (1999) 75.
- [38] S. Kato, M. Aono, K. Sato and Y. Baba: J. Vac. Sci. Technol. A 8 (1990) 2860.
- [39] C. Suzuki et al.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A 462 (2001) 337.
- [40] V. Bargmann, L. Michel and V. L. Telegdi: Phys. Rev. Lett. 2 (1959) 10.
- [41] J. Kessler: "Polarized Electrons", (Springer, Berlin, 1985) 2nd ed.
- [42] E. Merzbecher: "Quantum Mechanics", (J. Willey, New York, 1970) 2nd ed.
- [43] J. S. Blakemore: J. Appl. Phys. 53 (1982) 123.
- [44] 石川順三: "荷電粒子ビーム工学", (コロナ社, 2001).
- [45] 浜口智尋: "半導体物理", (朝倉書店, 2001).
- [46] K. Seeger: "セミコンダクターの物理学 上,下",(吉岡書店, 1991).
- [47] W. Walukiewicz, J. Lagowski, L. Jastrzebski and H. C. Gatos: J. Appl. Phys. 50 (1979) 5040.
- [48] T. Kaneto, K. W. Kim and M. A. Littlejohn: Phys. Rev. B 47 (1993) 257.
- [49] S. Tiwari and S. L. Wright: Appl. Phys. Lett. 56 (1990) 563.
- [50] F. Meier and B. Zakharchenya: "Optical Orientation" Modern Problems in Condensed Matter Sciences, Vol. 8, (Amsterdam, North-Holland, 1984).
- [51] M. I. D'Yakonov and V. I. Perel': Sov. Phys. JETP 33 (1971) 1053.
- [52] G. L. Bir, A. G. Aronov and G. E. Picus: Sov. Phys. JETP 42 (1975) 705.
- [53] K. Zerrouati, F. Fabre, G. Bacquet, J. Brandet, J. Frandon, G. Lampel and D. Paget: Phys. Rev. B 37 (1988) 1334.
- [54] T. Furuta, H. Taniyama and M. Tomizawa: J. Appl. Phys. 67 (1990) 293.
- [55] H. C. Casey jr., D. D. Sell and K. W. Wecht: J. Appl. Phys. 46 (1975) 250.
- [56] X. G. Jin et al., Appl. Phys. Exp. 1 045002 (2008).
- [57] N. Yamamoto et al., J. Appl. Phys. 103 064905 (2008).
- [58] M. Suzuki et al., Appl. Phys. Exp. 3, 026601 (2009).

高輝度・高スピン偏極用フォトカソードの開発

竹田美和、金 秀光、山本尚人、中西 彊、越川孝範

- 1. はじめに
- 2. 半導体歪み超格子フォトカソード
 - 2.1 半導体フォトカソードの原理
 - 2.2 スピン偏極フォトカソード
 - 2.2.1 原理
 - 2.2.2 歪みによる価電子帯分離
 - 2.2.3 超格子による価電子帯分離
 - 2.2.4 歪み超格子による価電子帯分離
 - 2.3 作製方法
 - 2.3.1 有機金属気相エピタキシャル法
 - 2.3.2 分子線エピタキシャル法
 - 2.4 構造の評価
 - 2.4.1 X線回折
 - 2.4.2 透過電子顕微鏡
 - 2.4.3 フォトルミネセンス
 - 2.5 特性の評価
- 3. 半導体歪み超格子による偏極度の向上
- 4. 半導体歪み超格子による輝度の向上

高輝度・高スピン偏極用フォトカソードの開発

竹田美和^{1,2)}、金秀光²⁾、山本尚人³⁾、中西彊³⁾、越川孝範⁴⁾

- 1. 科学技術交流財団シンクロトロン光センター
- 2. 名古屋大学 工学研究科
- 3. 名古屋大学 理学研究科
- 4. 大阪電気通信大学 エレクトロニクス基礎研究所

1. はじめに

物質中では、電子のスピンは一般的にはアップ・スピンとダウン・スピンの両者が 共存しているが、一方の電子を選択的により多く取り出すことができる。このような 電子源をスピン偏極電子源という。加速器用の電子銃やマイクロビーム用に開発され たスピン偏極電子源として、半導体歪み超格子を円偏光レーザにより励起し、負電子 親和力表面から取り出す電子源(フォトカソード、光陰極)が、輝度、スピン偏極度、 パルス性に優れているため、ここでは、その開発史の概要、構造と物理、作製方法、 構造の評価、特性の評価について述べ、偏極度を如何に向上させたか、また、輝度を 如何に向上させて来たかについても述べる。

2. 半導体歪み超格子フォトカソード

2.1 半導体フォトカソードの原理

まず、半導体から電子を取り出す原理について述べる。図1のバンド構造のように バンドギャップ(禁制帯幅。図の縦の矢印に相当)より大きいエネルギーを持った光 を半導体に照射すると、価電子帯から伝導帯に励起された電子は、図の左右に移動す るが、表面が負の電子親和力(伝導帯の底よりも真空準位の方が低いことを電子親和 力が負であると言う)となっていると、そこから電子は半導体の外(ここでは真空中) に出ることが出来る。実際には、ごく表面付近には図のようなピークが生じるが、電 子はトンネル効果により抜けてくると考えられている。表面を負の電子親和力状態に するためには、一般には Cs(セシウム)とO(酸素)を薄く付けることで実現されて いる。光による励起で電子を放出するためフォトカソード(光陰極)と呼ばれている。

2.2 スピン偏極フォトカソード

2.2.1 原理

フォトカソードに半導体 GaAs(砒化ガリウム)を用いてバンド構造を巧みに利用し、 スピンを偏極させた電子を取り出すことができる。以下にその原理について述べる。

GaAsを円偏光で励起し、負電子親和力表面から電子を取り出すスピン偏極フォトカ ソードは、従来からあったが¹⁾²⁾、スピン偏極度が低く(原理的には 50%、実際の使用 環境下では 30%程度と言われている)、負電子親和力表面の劣化が早く、実用的とは言 い難い状況であった。

GaAs のフォトカソードでスピン偏極度が原理的に 50%にとどまる理由は、閃亜鉛 鉱構造(立方晶)である GaAs のバンド構造に由来する。図2左のように、価電子帯 の頂上(Γ点)で重い正孔帯と軽い正孔帯が縮退している。

円偏光によりバンド端を励起すると、選択則により、例えば重い正孔の mj=-3/2 状態の電子は伝導帯の mj=-1/2 へ、軽い正孔の mj=-1/2 状態の電子は伝導帯の mj=1/2 へ 遷移する。従って、励起によってアップ・スピンの電子とダウン・スピンの電子が3: 1の割合で伝導帯に存在するため、励起された電子の偏極度 P は、

$$P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} = \frac{3 - 1}{3 + 1} = 50\%$$
(1)

となる。N₁はアップ・スピンの電子数、N₁はダウン・スピンの電子数である。

Γ点における縮退を解いて重い正孔帯と軽い正孔帯を分離させると、重い正孔から m_j=-3/2の電子だけを励起することができる。特に、圧縮歪みを加えると図3のような 分離が可能であり、この場合、励起光のエネルギーを重い正孔帯の頂上と伝導帯の底 との差に合わせると、原理的には偏極度が100%となる。結晶欠陥を少なく(量子効率 を高く)、十分な分離エネルギーを持った GaAs 薄膜(あるいは類似のバンド構造を持 った半導体)を成長することが必要である。また、負電子親和力表面を形成し、かつ 少数キャリアである電子を生成して用いるため、全層がp型である。

では、どのような方法で価電子帯の重い正孔と軽い正孔を分離させることができる か。勿論、外部から二軸性応力を加えることで、圧縮歪みを加えることはできる。し かし、これでは、歪みを安定に保つことはできないし、加圧するための装置も必要で ある。ここでは、結晶成長を巧みに利用した主として2つの方法について述べ、実際 にはこの2つの方法を組み合わせた第3の方法を用いていることを述べる。

2.2.2 歪みによる価電子帯分離

図4のように、下地層(基板)上に格子定数が大きい(a>b)薄膜を成長すると、原

子は面内で結合するため、弾性歪みにより薄膜結晶は上に伸びた格子定数をもつ正方 晶となる。この圧縮歪みは価電子帯の分離を引き起こす。

具体的には、GaAsの格子定数より小さい格子定数をもつ GaAs_{1-x}P_x 基板上に GaAs 薄膜を成長することで、GaAs に圧縮歪みを加え、約 86%の偏極度が得られた³⁾。この 時の価電子帯分離は 40meV と見積もられている。 ただし、GaAsP 基板が高密度の欠 陥を含み、GaAs 薄膜は臨界膜厚を超えるため、フォトカソードの欠陥密度が高い。こ こでの結晶成長法は有機金属気相エピタキシャル法を用いた。

2.2.3 超格子による価電子帯分離

一方、重い正孔帯と軽い正孔帯を分離する方法に、超格子を形成することにより、 それぞれが作るミニバンドのエネルギー準位の違いを利用する方法がある。図5のよ うな層構造で薄い井戸層と障壁層を作る。電子および正孔は障壁層をトンネルできる 薄さにすると、電子および正孔はそれぞれ重なり合い、ミニバンドを形成する。この ような構造を(人口)超格子と言う。格子整合系のAl_xGa1-xAs/GaAs超格子により、 75%の偏極度が得られた⁴。この時の価電子帯分離は44meVと見積もられた。ここ での結晶成長法は分子線エピタキシャル法を用いた。

2.2.4 歪み超格子による価電子帯分離

偏極度 90%以上で、より量子効率の高いスピン偏極電子源が望まれる。上記の経験 から、圧縮歪みと超格子による分離を併用した構造が、より大きい分離をもたらし、 従ってスピン偏極度の向上が期待される。室温の熱エネルギー(~25meV)による正孔 の分布を考えると、熱エネルギーの3倍程度の分離が半導体デバイスで必要とされる。 80meV 程度以上を目処とした。この範囲で、歪みは出来るだけ小さく抑えること、伝 導帯ミニバンド幅は 25meV 程度が望ましい。図6に歪み超格子の構造とバンド構造を 示す。ミニバンド間のエネルギー分離幅は、圧縮歪みの効果と超格子の効果が相乗し て、大きくとることができる。

これらを満たし、臨界膜厚を超えない歪み超格子として図7左のような、GaAs と GaAs0.65P0.35による歪み超格子をGaAs基板上にGaAsP緩衝層を介して成長すること とした。歪み超格子の各層は 4nm で 12 対の層構造とした。緩衝層の役割は、超格子 中のGaAs層が圧縮歪みを受けるように格子定数をGaAs⁵⁾よりも小さくするためで ある。この構造により、スピン偏極度 92%、量子効率 0.5%を達成した(図7右) 0 。この記録は未だ破られていない。

2.3 作製方法

2.3.1 有機金属気相エピタキシャル法

III-V 族化合物半導体の成長に広く用いられている方法である。GaAs は Ga が III 族元素で As が V 族元素であり、代表的な III-V 族化合物半導体である。III 族の原料 として有機金属 (Ga(CH₃)₃や Ga(C₂H₅)₃など)を、V 族の原料として水素化物や有機 化合物を用い、水素などをキャリアガスとしてこれらの原料を反応部に輸送し、そこ で熱分解させることで、Ga と As を化合させる。また、基板 (GaAs など)の上に下 地の結晶に習って成長することをエピタキシャル成長と言う。

原料の温度やキャリアガスの流量を精密に制御することで、GaAsを1分子層毎に成 長させることが出来る。また、広い面積(直径数インチ~12インチの円形基板)に わたって均一に成長することができる。GaAsPのようなV族が混ざっている場合や AlInAsのようにIII族がまざっている場合のいずれも成長制御が可能ある。各原料を 輸送するキャリアガスをバルブで on-off することで、異なる組成の超薄膜を制御性よ く交互に成長することもできる。

図8に反応部とガスフロー図を示す。III 族とV族の原料は反応部に到達するまで別 系列で輸送する。この反応部は2インチ基板まで対応できる。基板の大きさや枚数、 さらには原料ガスの供給法などによって反応部には様々な形がある。

本研究で、歪み超格子の成長に用いたのも有機金属気相エピタキシャル法である。 GaAs 基板上に、まず GaAs を薄く成長し、その上に GaAsP 緩衝層、さらに GaAs と GaAs0.65P0.35 による歪み超格子を各層 4nm で 12 対をすべて連続的に成長することが 出来るのは、この成長法くらいしかない。

2.3.2 分子線エピタキシャル法

分子線エピタキシャル法も III-V 族化合物半導体の成長によく用いられている。ヒー ター付きのセルに III 族原料や V 族原料を入れ、超高真空中で加熱することで、蒸発 した原料が反応せずに基板に到達し、基板上で化合させる。「2.2.3 超格子による価電 子帯分離」で例に上げた AlGaAs では、原料に高純度の Al 金属、Ga 金属および As4 を用いるのが普通である。一般には、V 族が一種類で、III 族が混ざった系の成長に用 いられ、III 族の切り替えも可能である。厚さの制御は1原子層(1分子層)でなされ ており、超格子のような超薄膜の繰り返し成長が可能である。図9に概念図を示す。 原料の供給量はセルの温度で制御し、切り替えはシャッターで行う。

2.4 構造の評価

上でに述べたように、半導体歪み超格子フォトカソードは、超薄膜層を繰り返し成 長することにより作製している。各層の厚さと組成は同一であることが必要で、これ らが乱れると、図6のミニバンドが平坦ではなくなる。その場合、励起レーザの波長 では励起されない場所ができたり、極端な場合、重い正孔と軽い正孔のミニバンドが 部分的に重なることもある。そうなると、一部で両バンドの電子が価電子帯から励起 されることになり、スピンの向きの異なる電子が混ざる、つまり偏極度が低下する。 後の「3.半導体歪み超格子による偏極度の向上」でも述べるが、そのような不都合 な成長に至ることがある。また、電子が表面に向かって走行する際にミニバンドの凹 凸が障害になる。これは、電子の輸送効率の低下を意味し、量子効率の低下に至る。 また、輸送途中でスピンの向きが保たれず、偏極度の低下につながる。

従って、半導体歪み超格子の構造を評価し、その結晶成長条件との相関を詰めることは、高性能のフォトカソードを再現性よく作製する上で極めて重要である。 歪み

2.4.1 X線回折

これまで、GaAs 基板上に GaAsP 緩衝層を介した GaAs/GaAsP 超薄膜層の歪み超 格子構造を高スピン偏極度フォトカソード用として紹介してきた。「4. 半導体歪み超 格子による輝度の向上」で詳しく述べるが、基板側から励起光を照射するために、バ ンドギャップの広い III-V 族半導体として GaP を基板に用いる。従って、GaP 基板上 に GaAsP 緩衝層を介した GaAs/GaAsP 超薄膜層の歪み超格子構造も評価の対象とな る。いずれにしても、このような構造を評価するにはX線回折測定が簡便でかつ精度 が高い。ある程度の厚さをもった層からのX線回折ピークと同時に、わずか 12 対の超 格子であるが超格子回折ピークも観測できるため、緩衝層の組成と超格子層の周期を 求めることができる。また、超格子回折角度から平均組成(実際には平均格子定数) を求めることができる。

図10左に、GaAs 基板上に GaAsP 緩衝層を介した GaAs/GaAsP 歪み超格子からのX線回折ピークを、右に GaP 基板上に GaAsP 緩衝層を介した GaAs/GaAsP 歪み超格子からのX線回折ピークを示す。いずれも、GaAs または GaP 基板からのピーク、GaAsP 緩衝層からのピークおよび超格子からのピークが観測される。超格子ピークの間隔から超格子の周期が求められる。ここに示した GaAs 基板上では、超格子の周期は8nm、緩衝層のP組成は0.36 である。また、GaP 基板上では、超格子の周期は8.6 nm、緩衝層のP組成は0.38 である。

2.4.2 透過電子顕微鏡

図11に、GaAs/GaAsP 超格子層の透過電子顕微鏡像を示す。黒い線が GaAs 層で、

灰色が GaAsP 層である。左下のスケールから、各層の厚さを求めることができる。ま た、電子線で励起された蛍光X線の GaAsP の組成を見積もることができる。透過電子 顕微鏡観察は、nm スケールで層の各部の構造を観察できるが、このような観察ができ る試料の準備(破壊する)に時間と技術を要する。一方、X線回折では、mm スケー ルの平均値であるが、非破壊で測定でき、測定後もそのままフォトカソードを作製で きる。一般には、X線回折測定と透過電子顕微鏡観察を突き合わせて相補的に解析し、 それを基に日常的にはX線回折での測定を行う。

2.4.3 フォトルミネセンス

結晶学的構造ではないが、ミニバンド間の光学的遷移をフォトルミネセンスで測定 することにより、エネルギー構造を算出することができる。桑原、中西による「スピ ン偏極電子ビーム源に関する技術開発」に超格子の電子状態とミニバンドについて記 述があるので参照されたい。

図12には、図11で示した GaAs 基板上および GaP 基板上の歪み超格子試料のフ オトルミネセンス・スペクトルを示す。主ピークが超格子のミニバンド間の遷移によ るものである。両者間で 5nm の差異があるが 0.6%程度であり、超格子の周期や組成 の再現性は非常によいと言える。

ミニバンドのエネルギー準位は、超格子の各層の厚さ、組成および歪みに依存する が、これらのパラメーターを用いて正確な計算が可能である。超格子の周期、平均組 成はX線回折からわかっているので、フォトルミネセンス・ピークのエネルギーから ミニバンドのエネルギー準位差を求め、それに一致する上記のパラメーターを求める ことができる。即ち、超格子の結晶学的構造を求めることができる。従って、出来た 超格子の構造を評価するために、X線回折とフォトルミネッセンス測定を行うのが一 般的であり、それを日常的に行うことで、構造を確認している。

2.5 特性の評価

スピン偏極電子の特性として、引き出された電子ビームの電流値、電子の輝度、ス ピン偏極度さらにはパルス特性などがある。スピン偏極度の測定法については、桑原、 中西による「スピン偏極電子ビーム源に関する技術開発」に述べてあるので、ここで は省略する。また、電子を効率よくまた暗電流を抑制して引き出すには、適切な電子 銃の設計が必要である。これは、中西らにより既になされており、桑原、中西の「ス ピン偏極電子ビーム源に関する技術開発」で述べられているので省略する。

ここでは、裏面照射型のフォトカソードにおける輝度の測定に絞ってのべることと

する7)。

図13左より、電子ビームの輝度測定の模式図、観察結果、測定結果を示す。レンズで集光されたレーザースポットは、裏面で反射された光を通じて観察することができる。この強度プロファイルを測定することで、スポット径を計算できる。その半値全幅が1.3µmと算出される。その半分を電子ビーム発生部の半径rとする。また、フォトカソードから1の距離にナイフ端を置き、電子ビームを切りながらファラデー・カップで電流値を測定することで、その位置での電子ビームの径を測ることができる、この半径をRとする。また、引き出された電流をLoとする。これはナイフ端を外した時の全電流値である。

輝度は、電子の発生面積をs、電子ビームの立体角を Ω とすると、 $s=\pi r^2$ 、 $\Omega=\pi (R-r)^2/P$ であるから、輝度は下記の式で表される。

$$\nexists \not \equiv \frac{l_o}{s \cdot \Omega} = \frac{l_o}{\pi r} \frac{l_o^2}{\pi (R-r)^2}$$
(2)

引出電圧 20kV における測定結果の 2*r*=1.3μm、*L*=5.3μA、*R*=1.9mm を用い、測定誤 差も考慮すると、2.1±0.8×10⁷Acm⁻²sr⁻¹が得られる。これは、従来の値を4桁超える 値である。⁷⁾

3. 半導体歪み超格子による偏極度の向上

すでに述べたように図7で示したスピン偏極度が世界記録であり、我々のフォトカ ソードでもこれを超えるものは、未だ得られていない。図7は表面照射型であるが、 裏面照射型や他の材料系でのフォトカソードもあるので、実用上必要と考えられてい る 85~90%のスピン偏極度を持つものは了として開発を進めている。ここでは、表面 照射型から裏面照射型のフォトカソード作製に移った時に観察したスピン偏極度の低 下とその対策、90%以上のスピン偏極度への回復について述べたい。

基板側からの励起光照射(裏面照射型)とし、短焦点レンズによる励起光のスポットサイズを大幅に縮める(即ち電子ビームの発生領域を)ことが出来れば、フォトカソードの輝度が飛躍的に向上することは、輝度の定義((2)式)からも明らかである。これを実行するために、励起光のエネルギー1.6eV(波長 780nm)より広いバンドギャップ(2.26eV)をもつ GaP に基板を変えることとした(GaAs のバンドギャップは

1.42eV)。基板の写真は図14のようであり、可視領域での透明性が分かる。

まずは、GaAs 基板上で高いスピン偏極度が得られた図7の歪み超格子構造をそのま ま、GaP 基板上に GaAsP 緩衝層を介して成長した。ところが、得られたスピン偏極 度は図15に示すようにピーク値で 64%まで落ちた⁸。図7の右図と比較されたい。 64%でも従来の GaAs フォトカソードに比べると、2倍以上であり、十分高いスピン 偏極度ではある。しかし、既に 92%のスピン偏極度を達成している我々にとっては、 落胆させられる衝撃的な値であった。

その原因を探ることと早急な対応策が必要であった。図15の測定は裏面照射であ ったため、まずは同じフォトカソードを表面照射でスピン偏極度の測定を行ったが、 まったく同じ結果であった。

次に疑いをもったのは結晶そのものである。結晶成長では、まず最初に表面を光学 顕微鏡(ノマルスキー微分干渉型。表面の凹凸が強調して見られる)で観察する。い わゆる鏡面であることが応用上重要であり、よい結晶が出来ているときは、まず鏡面 である。図16がその観察結果である。左がGaAs基板上のGaAsP緩衝層の表面像で あり、右がGaP基板上のGaAsP緩衝層の表面像である。一見して、左の表面は、緩 衝層が引張り歪みを受けているときに特有な転位群あるいはクラックが生じているこ とが分かる。右の表面は、従って圧縮歪みを受けていることによる荒れた面となった と考えられる。緩衝層がこのように異なるので、その上にエピタキシャル成長させた 歪み超格子では、それらの影響を強く受ける筈である。

さらに詳しく観察するため、歪み超格子層まで成長して、原子間力顕微鏡(AFM) で表面を観察した。図17に示す。GaP 基板上の試料表面で非常に特徴的なのは、図 中〇で囲んだ細い枝状の部分である。傾斜部に大量に発生していることが分かる。そ の断面プロファイルを示したのが図18上である。凹凸のある部分と平坦部分に分か れており、赤い逆三角形が図17右に示したところと同じ位置を示す。

凹凸のある部分と平坦部分で、歪み超格子がどのように成長しているかを見るため、 透過電子顕微鏡像を観察した。図18下の写真である。形状と凹凸のスケールが一致 していることが分かる。図18の左傾斜部を更に拡大すると、図19のように、極め て明瞭に、超格子層の厚さが大きく変調していることが分かる⁹。平坦部の超格子層 が均一な厚さで成長していることは図11で示した通りである。

このような層厚変調部ではミニバンドも大きく乱れており、もはや図5のような平 坦なバンドではなく、また軽い正孔と重い正孔も重なっており、従って、遷移の選択 則も破れていると考えられる。このような層厚変調部の面積を見積もると、全体の30% に達している。GaP 基板上のフォトカソードで、スピン偏極度が 64%に落ちたことは、 高偏極度を持つ平坦な超格子部分が 70%しかないため、最大スピン偏極度 92%の7掛 け、すなわち 64.4%となり、極めて合理的に説明できる。

GaAsP 緩衝層の傾斜部にこのような層厚変調がなぜ発生するかについては、詳細な 議論が展開されている。¹⁰

さて、このようにスピン偏極度の低下理由が結晶成長に由来することが分かったの で、次はその対策である。GaAsP 緩衝層が GaP 基板により圧縮歪みを受けることが そもそもの原因であることから、励起光に対して透明で GaAs と同じような(GaAsP より格子定数が大きいか若しくは等しい)基板を用いることが必要と考えられる。そ のような半導体に ZnSe がある。バンドギャップは 2.71eV で格子定数は 0.5668nm で ある。しかし、II-IV 族半導体である ZnSe 上に III-V 族半導体の GaAsP を成長させ た報告はなく、ZnSe の表目処理や成長条件を一から見出さねばならず、これには時間 がかかると判断した。

次に考えたのが、GaP 基板に GaAs 膜を成長させ、GaAs 自身の格子緩和により、 あたかも GaAs 基板のごとく格子定数を変えることである。GaAs は励起光を吸収する ので、格子緩和が起こりかつできるだけ薄い層厚とすることが必要である。実験の結 果、500nm あれば、上記の条件を満たすことがあきらかとなり、図20のような層構 造を作製した。この格子緩和層を GaAs 中間層と称している。

このフォトカソードのスピン偏極度を図21に示す。同図に示してあるように、64% のスピン偏極度が90%に回復した⁸⁾⁹⁾。これで、裏面照射で高いスピン偏極度を保った まま高輝度化の実現がなされた。ただし、GaAs中間層による励起光の吸収のため、量 子効率は0.5%から0.14%に落ちた。後に、中間層のGaAsをAlGaAsに代え、また、 GaP 基板裏面に反射防止膜を設けることで0.4%まで回復させた¹¹⁾。

4. 半導体歪み超格子による輝度の向上

輝度の向上については、実質既に述べてきた。基板側からの照射(裏面照射)がポイントで、短焦点のレンズで集光できることから,電子ビームの発生領域を直径数 100 μ mから 1 μ m 程度に縮小したことである。これにより電子線の輝度は、従来値を4桁塗り替える 1×10⁷Acm⁻²sr⁻¹となった ⁸⁾¹¹⁾。

このフォトカソードを電子銃に搭載する場合、残留ガスによるイオン衝突が Cs 表面 を損傷する。電子銃の材質と形状の設計および極高真空(10⁻¹⁰ Pa)を保つことが重 要である。図22に、裏面照射型電子銃の断面図を示す ¹²⁾。この電子銃は2ヶ月以上 の寿命を持ち、高いコントラストで磁気ドメイン形成の実時間観察を可能にした¹³⁻¹⁵⁾。 また、励起光をパルス駆動することで、容易にパルス電子源とすることができる。10ps のパルス電子の発生が観測されている¹⁶⁾。

謝辞

スピン偏極電子銃の開発におけるフォトカソードの開発については、共著者以外に 名古屋大学の宇治原徹教授、大学院生であった市橋史朗君、加藤鷹紀君、谷奥雅俊君、 陳 博君の寄与に感謝したい。また、共同研究を進めて来た中西グループおよび越川 グループとの日頃の議論は大いに勇気付けられ、研究を加速させた。

本研究を遂行するにあたって JST 先端計測分析技術・機器開発(要素技術)

(No. 19201022) (2005-2009 年度)の補助を受けた。引き続き JST 産学イノベーション加速事業、先端計測分析技術・機器開発(機器開発) (2010-2013 年度)を受けた。
また、日本学術振興会・科学研究費補助金基盤研究(S)(2006-2010 年度)、基盤研究
(A)(2011-2013 年度)の助成を受けた。

引用文献

1) D.T. Pierce, F. Meier, and P. Zurcher, Phys. Lett., Vol. 51A, pp. 465-466 (1975).

D.T. Pierce, F. Meier, and P. Zurcher, Appl. Phys. Lett., Vol. 26, pp. 670-672 (1975).

T. Nakanishi, H. Aoyagi, H. Horinaka, Y. Kamiya, T. Kato, S. Nakamura, T. Saka, and T. Tsubata, Phys. Lett. A, Vol. 158, pp. 345-349 (1991).

T. Okumi, Y. Kurihara, T. Nakanishi, H. Aoyagi, T. Baba, T. Furuya, K. Itoga, M. Mizuta, S. Nakamura, Y. Takeuchi, M. Tsubata, and M. Yoshioka, Phys. Rev. Lett., Vol. 67, pp. 3294-3297 (1991).

5)格子定数は GaAs が 0.563nm、GaP が 0.555nm である。また、GaAs の禁制帯幅は 1.42eV、励起光のエネルギーは 780nm 付近でこれは 1.59eV に相当する。GaP の禁制 帯幅は 2.26eV である。(いずれも室温の値)。

6)T. Nishitani, T. Nakanishi, M. Yamamoto, S. Okumi, F. Furuta, M. Miyamoto, M. Kuwahara, N. Yamamoto, K. Naniwa, O. Watanabe, Y. Takeda, H. Kobayakawa, Y. Takashima, H. Horinaka, T. Matsuyama, K. Togawa, T. Saka, M. Tawada, T. Omori,

Y. Kurihara, M. Yoshioka, K. Kato, and T. Baba, J. Appl. Phys., Vol. 97, 094907-1-6 (2005).

7)N. Yamamoto, T. Nakanishi, A. Mano, Y. Nakagawa, S. Okumi, M. Yamamoto, T. Konomi, X.G. Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Ohshima, T. Saka, T. Kato, H. Horinaka, T. Yasue, T. Koshikawas, and M. Kuwahara, J. Appl. Phys., Vol. 103, pp. 064905-1-7 (2008).

8)X.G. Jin, N. Yamamoto, Y. Nakagawa, A. Mano, T. Kato, M. Tanioku, T. Ujihara, Y. Takeda, S. Okumi, M. Yamamoto, T. Nakanishi, T. Saka, H. Horinaka, T. Kato, T. Yasue, and T. Koshikawa, Appl. Phys. Express, Vol. 1, pp. 045002-1-3 (2008).

9)X.G. Jin, H. Nakahara, K. Saitoh, N. Tanaka, and Y. Takeda, Appl. Phys. Lett., accepted for publication.

10)X.G. Jin, Y. Maeda, T. Sasaki, S. Arai, Y. Ishida, M. Kanda, S. Fuchi, T. Ujihara, T. Saka, and Y. Takeda, J. Appl. Phys., Vol. 108, pp. 094509-1-6 (2010).

11)X.G. Jin, F. Ichihashi, A. Mano, N. Yamamoto, and Y. Takeda, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 51, pp. 108004-1-2 (2012).

12)N. Yamamoto, A. Mano, Y. Nakagawa, A. Utsu, T. Konomi, S. Okumi, M. Yamamoto, T. Nakanishi, X.G. Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Ohshima, T. Yasue, T. Koshikawa, H. Horinakra, T. Saka, and T. Kato, Proc. 4th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, pp. 188-190 (2007).

13)M. Suzuki, M. Hashimoto, T. Yasue, T. Koshikawa, Y. Nakagawa, T. Konomi, A. Mano, N. Yamamoto, M. Kuwahara, S. Okumi, T. Nakanishi, X.G. Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Kohashi, T. Ohshima, T. Saka, T. Kato, and H. Horinaka, Appl. Phys. Express, Vol. 3, 026601-1-3 (2010).

14) 越川孝範、中西 彊、竹田美和、まぐね、Vol. 6, pp. 314-329 (2011).

15)越川孝範、鈴木雅彦、安江常夫、E. Bauer、中西 彊、金 秀光、竹田美和、顕微 鏡、Vol. 3, pp. -14 (2013).

16)Y. Honda, S. Matsuba, X.G. Jin, T. Miyajima, M. Yamamoto, T. Uchiyama, M. Kuwahara, and Y. Takeda, Jpn. J. Appl. Phys. , Vol. 52, pp. 086401-1-7 (2013).

12



図1 半導体のバンド構造と負の電子親和力表面。



図2 GaAsのバンド構造(左)、価電子帯と電子のスピン(中央)。円偏光で励起する と矢印の遷移が選択的に起こる。



図3 GaAsに2軸性圧縮応力を加えると、価電子帯の縮退が解ける。励起光エネルギーを重い正孔と伝導帯の差分に合わせるとアップ・スピンの電子のみ励起できる。



図4 成長層に圧縮歪みを導入。この時価電子帯の縮退が解け、分離が起こる。



図5 超格子構造とエネルギー構造およびミニバンド



図6 歪み超格子の構造とバンド構造およびミニバンド



図 7 (左)GaAs 基板上に GaAsP 緩衝層を介して作製したフォトカソード。(右) スピン偏極度 92%の世界記録を達成。そのときの量子効率は 0.5% ⁶⁾。



反応部の外観図



図8 有機金属気相エピタキシャル成長装置の反応部(左)とガスフロー図(右)



図9 分子線エピタキシャル成長装置の概念図



図10 GaAs 基板上に GaAsP 緩衝層を介した GaAs/GaAsP 歪み超格子からのX線回 折ピーク(左)、GaP 基板上に GaAsP 緩衝層を介した GaAs/GaAsP 歪み超格子から のX線回折ピーク(右)



図11 GaAs/GaAsP 超格子層の透過電子顕微鏡像。黒い部分が GaAs、灰色が GaAsP



図12 GaAs 基板上(左)および GaP 基板上(右)の歪み超格子試料のフォトルミ ネセンス・スペクトル



図13 電子ビームの輝度測定の模式図、観察結果、測定結果。



図14 GaAs 基板(左)とGaP 基板(右)の透過度



図15 GaP 基板上フォトカソードのスピン偏極度。GaAs 基板上の 92%から 64%まで落ちている。



図16GaAs 基板上(左)とGaP 基板上(右)GaAsP 緩衝層のノマルスキー顕微鏡像

GaAs基板上超格子試料



GaP基板上超格子試料



図17 GaAs 基板上(左)とGaP 基板上(右)GaAsP 緩衝層のAFM 像



図18 GaP 基板上 GaAsP 緩衝層の傾斜部に発生する枝部の AFM 像と断面プロファ イル



図19 GaP 基板上 GaAsP 緩衝層の傾斜部に発生する超格子の層厚変調



図20 GaAs 中間層を用いた GaP 基板のフォトカソードの層構造


図21 GaP 基板のフォトカソードのスピン偏極度の回復



図22 裏面照射型フォトカソードを搭載した長寿命スピン偏極電子銃の断面図 12)。

透過型電子顕微鏡による磁性観察法

原田 研

日立製作所 中央研究所 〒350-0395 埼玉県鳩山町赤沼 2520

1. はじめに

透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope (TEM))による磁性材料の観察 は、磁性体を透過する間に電子線が受ける Lorentz 力による偏向作用を可視化することに より、磁性体内の磁壁、あるいは磁区を観察する手法として開発された[1,2]. そのため、 一般には、Lorentz (ローレンツ)顕微鏡法[3,4]として知られている.しかし、今日では Lorentz 偏向にとどまらず電場による偏向も含め、広く Bragg 回折など結晶と電子線との 回折効果以外の偏向作用を可視化する手法として、走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope (SEM))を用いた反射法[5]、走査透過型電子顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscope (STEM))を用いた位相差コントラスト(Differential Phase Contrast (DPC))法[6]など、装置の特徴を生かした複数の手法が開発されている.また、電子線の 干渉を利用して偏向角度分布を位相分布として直接可視化できる電子線ホログラフィー[7] や Coherent Foucault 法[8]、そして、インフォーカス像と2枚のデフォーカス像から強度 輸送方程式(Transport Intensity Equation (TIE))に基づく画像処理によって位相分布を 求める強度輸送方程式法 [9]も、磁性観察が可能な透過型電子顕微鏡の技法として発展して いる.

透過型電子顕微鏡を用いた磁性観察法には、(i) 高倍率,高分解能で磁区,磁壁が直接観 察できる,(ii) 磁性体中の欠陥,不純物などが観察できる,(iii) 磁場変化,温度変化など外 部環境の変化の影響を動的に観察できる,などの特徴がある.そして,これらの特徴を1 つの装置で実現できるところも特徴のひとつであり利点である.しかし,これら利点を享 受するためには,さまざまな技術や工夫が必要となる.本稿では,筆者が開発に携わって いる Lorentz 法(特に Foucault 法) や電子線ホログラフィーなど,最近の新しい手法を中 心に,これら技術的な工夫やいくつかの応用結果に関して紹介する.

2. 代表的な観察手法

2.1 材料中の均一な電磁場による偏向

運動する荷電粒子(電荷:q,速度:v)が均一な電磁場(電場:E,磁束密度:B)から 受ける力は Lorentz 力 Fであり、一般に式(1)で表わされる.

$$F = q(E + v \times B) \tag{1}$$

誘電体あるいは磁性体などの材料中を透過する間に電子が受ける偏向作用も、均一な磁 場中での荷電粒子の運動と同様に取り扱うことが可能で、誘電体中では電荷密度の揺らぎ による電場の方向への放物線運動、磁性体中では磁束の方向を軸とした円運動と考えれば よい.厚さtの試料中での電場や磁束密度が均一であるとき、電子線が受ける偏向角度(光 軸と平行に入射した電子線が試料を射出する際の光軸と成す角度)の大きさは、誘電体(偏 向角度: θ_E)と磁性体(偏向角度: θ_B)で、それぞれの場合を分けて記述すると式(2)、 式(3)と表わされる.但し、光軸方向への投影した方位は、 θ_E と θ_B とでは直交している.

$$\theta_E = \frac{eEt}{2m_e v^2} = \frac{Et}{4V_0} \tag{2}$$

$$\theta_{B} = \frac{eBt}{m_{e}v} = \sqrt{\frac{e}{2m_{e}}} \frac{Bt}{\sqrt{V_{0}}} = \frac{e}{h} B\lambda t \tag{3}$$

ここで e は電子の電荷, h は Planck 定数, m_e は電子の質量, V_0 は電子線に与えられた加速 電圧, λ は電子線を波と捉えたときの波長である.

式(2),式(3)より,偏向角度は電磁場の大きさとそれが影響する範囲(ここでは膜 厚t)に依存しているだけでなく,入射する電子線の加速電圧にも依存していることがわか る.加速電圧が増すほど,試料透過中に電子線が受ける偏向角度が小さくなる傾向は誘電 体も磁性体も同じであるが,その程度は誘電体の方が大きい.透過型電子顕微鏡では,透 過能を大きくするとともに結像光学系の球面収差を小さく抑えるため,加速電圧の高い電 子線を用いる傾向がある.そのため,原理的には誘電体よりも磁性体の方が観察が容易で ある.

しかし、電子光学系で用いられる電子レンズや偏向器などの光学機器が発生させる磁場 が磁性材料の磁気特性に影響を与えないよう配慮する必要がある.具体的には、①静電型 レンズを用いる[2]、②対物レンズをオフにする[10]、②試料を空間磁場が十分に弱い位置 に配置する(長焦点弱励磁レンズを用いる)[11]、③磁気シールドレンズを用いる[12,13]、 などの対策が採られている.これらの対策は,いずれも観察時に試料を磁場に浸漬させな い工夫であり,透過型電子顕微鏡が得意とする高分解能観察と両立しない装置構成を必要 とする.そのため,磁性材料観察のために特化した構成を持つ電子顕微鏡を Lorentz 顕微 鏡と呼び,他の装置と区別することが多い.このような磁性材料の磁気特性に対する配慮 が光学系に制約を与えるため,原理的容易さが技術的容易さには直結していないのが現状 である.

図1は磁性材料中で電子線が偏向する様子を示した模式図である. 図中rは電子線が磁性 材料中で行う円運動の回転半径であり、一般に荷電粒子線では、粒子速度vが決まると、 Br = Constantの関係が知られている. 例えば、加速電圧 300 kV の電子線の場合の値は、 $Br = 2.10 \times 10^{-3}$ (Wb/m²)、200 kV の場合の値は 1.65×10^{-3} (Wb/m²) である.



図1 磁性体中の電子線の偏向

図1のモデルに基づき電子線の受ける偏向角度 θ_B を見積ってみると、例えば、膜厚 100 nmのコバルト(Co)薄膜を加速電圧 300 kVの電子顕微鏡で観察する場合、 $\theta_B = 0.8 \times 10^4$ rad となり Bragg 角よりも2桁も小さい. このように、試料を磁場中に浸漬させてはなら ないという制約を受けた光学系において小さな偏向角度を受けた電子線分布を如何に可視 化するかが、透過型電子顕微鏡を用いた磁性材料観察手法に共通する課題であり、これま でにいろいろな方法が考案されている.以下に主な手法を紹介する.

2.2 Fresnel法

図2に Lorentz 法の1つである Fresnel 法で磁性材料を観察する際の光学系と,各々の 光学系の下部に Fresnel 像を示す. 180°反転磁区構造を有する均一な厚さの磁性材料を試 料とし,平行入射した電子線が,図面上左右に同じ角度ずつ偏向を受ける様子を示してい る. 偏向を受けた電子線は試料下方に十分な距離だけ伝播すると,投影面(図中赤色の一 点鎖線で示した対物レンズの物面)上において磁壁に該当する位置で互いに重なりあう状 況と,逆に互いに離れる状況が発生する.この投影面上での電子線の強度の粗密を結像す るのが Fresnel 法である.この投影面については,試料の下側(オーバーフォーカス条件), 上側(アンダーフォーカス条件)の両方の場合が光学系として構築可能である.



図2 Fresnel 法の光学系, (a)オーバーフォーカス条件, (b)アンダーフォーカス条件

図2(a)はオーバーフォーカス(過焦点)条件,図2(b)はアンダーフォーカス(不足焦点) 条件である. 試料に入射した電子線は,試料内部の磁化により偏向を受け,ちょうど磁壁 に沿って粗密が発生する. その結果,磁壁が明線(白色)または暗線(黒色)のコントラ ストで観察される. 図2(a),(b)に示すごとく,フォーカスの過不足が反転すると磁壁のコ ントラストも反転する. また,磁壁を構成する磁区の方位にも依存してコントラストが反 転する. Fresnel 像における磁壁のコントラストの大きさは,フォーカスをはずす量(デフ オーカス量)と電子線が受ける偏向の大きさに依存し,強磁性材料などで電子線が大きく 偏向される場合には数百 nm 程度の小さなデフォーカス量で十分なコントラストが得られ るが,小さな偏向しか与えない観察対象の場合には,数百 mm ものデフォーカス量が必要 となる場合もある.

Fresnel 法は、光学系のフォーカスをはずすだけでコントラストが得られるため簡便で、 最も多用されている観察手法である。例えば、試料材料と磁壁との相互作用の観察[14]や磁 区の核生成[15]など、動的な観察にも有効である。また、磁性材料以外にも、例えば超伝導 材料中の磁気構造(磁束量子の空間分布)の動的観察[16,17]などにも用いられている。

2. 3 Foucault 法

図3は、Foucault 法による磁区構造観察の光学系である.図2と同様に均一な膜厚の 180°反転磁区構造を有する試料を透過した電子線は、それぞれの磁区で互いに逆方向に偏 向を受け、対物レンズの後焦点面(厳密には光源の像面)で、偏向角度に応じた位置にク ロスオーバー(光源の像)を結ぶ.Foucault 法はこの位置に対物絞り(角度制限絞り)を 挿入し、観察したい磁区からの電子線のみを選択し結像させる方法である.例えば図3(a) では、紙面表向きの磁化を持つ磁区を透過し紙面右方向に偏向された電子線を選択した例 であり、図3(b)は逆に、紙面裏向きの磁化を持つ磁区を透過し紙面左方向に偏向された電 子線を選択した例である.いずれにしても、選択された磁区が明、選択されなかった磁区 が暗(電子が来ない)のコントラストで観察され、図3の場合、磁区構造がストライプ状 のFoucault 像として可視化される.



図3 Foucault 法の光学系, (a)右偏向電子線による結像, (b)左偏向電子線による結像

Foucault 法ではインフォーカスで試料像が観察されるため高分解能観察が期待されるが、 軸非対称な対物絞りの挿入法を用いた場合には別途コントラストの成因には検討が必要と なる、あるいは孔径の小さな対物絞りを使用した場合には得られる空間分解能は回折収差 により制限されるなど、必ずしも高分解能は得られない.さらに Foucault 法でのコントラ ストの成因は、観察しない磁区を透過した電子線の遮蔽によるものであり、『情報の一部を 捨てる』ことによって得られている.そのため、例えば、結晶粒界など複数の磁区に渡っ た対象を観察する場合には、対物絞りを調整し直して、逆コントラストの Foucault 像を別 途観察するか、対物絞りを光軸から外して通常の電子顕微鏡像を合わせて観察しておく必 要があった.すなわち、複数回の観察が必要で、動的観察、実時間観察などには不適当な 観察法であった.しかし、最近になって Twin Foucault 法[18]や Lens-less Foucault 法[19] が開発され、これらの課題のいくつかは解決されている.これらの手法については後述する.

2. 4 位相差コントラスト法 (Differential Phase Contrast (DPC))

走査透過型電子顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscope (STEM))を用いたLorentz法としては、位相差コントラスト(Differential Phase Contrast (DPC))法がある[6, 20]. この手法は局所領域の磁気計測を目的に開発されたもので、装置上の特徴は4分割検出器を用いるところにある.まずはじめに、試料を照射する電子線を収束させ、試料内に磁化が無いとき、あるいは試料内の磁化が無い領域を透過した電子線の検出器面上の照射領域を4分割検出器の中央に位置する様に調整しておく(図4b).この状態で、収束電子線を試料面上で走査する、あるいは試料を微動させると試料内の磁化に応じて電子線が偏向され、検出器面上での電子線の照射位置がずれる(図4a, c).すなわち、4分割検出器のそれぞれの検出器が検出する信号強度が変化する.収束電子線の照射角が、磁化による偏向角よりも十分に小さい場合には、この信号強度の差がそれぞれの方向への電子線の偏向角度と比例関係にあることを利用して、偏向角度の大きさとその方位を知ることができる.これから試料内の磁化の大きさと方位が定量的に求まる.



図4 位相差コントラスト (DPC) 法の光学系

また DPC 法では、4 分割検出器の信号強度の総和は、透過した電子線の強度に等しいた め、試料の膜厚や材質の違いによる透過能の空間分布など、通常の走査透過型電子顕微鏡 の情報も同時に得ることができている.定量的、定性的にも優れた手法である.但し、他 の Lorentz 法と同様に試料を磁場に浸漬することができないため、通常の走査透過型電子 顕微鏡法で用いられる対物レンズの前方磁界を用いた電子線の収束手法を用いることはで きない.そのため、試料上に電子線の微小スポットを作ることが難しく、空間分解能が制 約を受けている.空間分解能向上のためには、今後、収差補正器を併用した長焦点型収束 装置などが実用化されていくだろう.

なお、走査透過型電子顕微鏡を用いた磁性観察法については、上述の電子線の偏向角度 を検出する DPC 法だけでなく、照射光学系に電子線バイプリズムを配置し干渉効果を合わ せることによってより高精度に磁化分布を検出する走査型干渉顕微鏡法(Scanning Interference Electron Microscopy) [21]も開発されている.この手法については、走査透 過型電子顕微鏡を用いたホログラフィー[22]としての分類も可能であろう.

2. 5 小角回折法 (Small Angle Electron Diffraction (SAED))

小角回折(Small Angle Electron Diffraction (SAED))法は,電子線の小さな偏向角度を 回折面で回折パターンとして(すなわち,大カメラ長の回折パターンとして)観察する手 法である.磁性材料への適用は1960年代に実施されていた[23,24]が,その後長く利用され なくなっていた技術であった.平均的な偏向角度の情報を得るには有効な手法で,磁気デ バイスの微細化・薄膜化などにより電子線の偏向角度が小さくなった近年,個別の素子に よる透過電子の微小な偏向角度を検出するよりも,平均的ではあるが電子線の照射領域全 体から受ける透過電子線の偏向角度を回折面で検出する方法として,例えばカイラル磁性 体の磁区構造評価に用いられる[25]など見直されている.

小角回折を大カメラ長で観察する光学系は,高分解能観察光学系とは,角度と倍率の取り扱いが逆の関係となっている.すなわち,空間倍率を抑えて角度倍率を上げた光学系を 構築しなければならない.図5に小角回折のための光学系の一例を示す[26].小角回折の観 察(図5b)と試料実像観察(図5a)とを両立させるため,対物レンズは試料上側の光源 (クロスオーバー)にフォーカスし,対物レンズ下部の結像レンズによって回折パターン と試料像との観察を使い分ける光学系である.対物レンズは磁気シールドレンズなど,レ ンズ磁場が試料に影響しないことを前提としている.



図5 小角回折法の光学系, (a)実像観察光学系, (b)回折パターン観察光学系

図6に小角回折法の実例を示す[27]. 図6(a)は,窒化シリコンメンブレン(SiN 膜)上 に作製した厚さ30nm,一辺1µmの矩形パーマロイドットの人工格子をFresnel法にて観 察(オーバーフォーカス)した試料の実像である.磁気ドット内で内部磁化は閉じており, 中心部の白点は内部磁化が時計回り,黒点は反時計回りに回転していることを示している. 図6(b)はカメラ長100mにて観察した(a)の小角回折パターンである.4方向の磁気偏向に 加えて,人工格子のBragg回折スポットも同時に観察されており,磁気構造と試料形状と の関係を逆空間(角度空間)で同時に知ることができている.試料の像(図6(a))と合わ せた観察により,より詳細な観察対象の物性情報を得ることが可能である.



図 6 磁性人工格子の観察例(加速電圧: 200 kV) [27] (a) Fresnel 像(オーバーフォーカス), (b)小角回折パターン

2. 6 電子線ホログラフィー

電子線ホログラフィーは、電子線を電子波と捉えた際の波面の形状を位相分布として直接計測可能な実験手法である[7,28].ホログラフィーを実施するのに十分なコヒーレンスを 持った電子線と、物体の情報を持った物体波と比較のための参照波を重畳させるためにビ ームスプリッターが必要不可欠な技術要素であるが、コヒーレントな電子線は電界放出形 電子銃により、ビームスプリッターは電子線バイプリズムにより実現されている.

電子線ホログラフィーにおいても、レーザーホログラフィーと同様に、「ホログラムの記 録」と「ホログラムからの再生」の2段階の実験手順を必要とする.電子線ホログラフィ ーが実現された当初は、電子線で記録されたホログラム(フィルム)をレーザー光学系を 用いて干渉顕微鏡像として再生する光学再生法が用いられていたが、コンピュータシステ ムが発達した現在では、記録されたホログラムを演算処理によりデジタル再生する手法が 一般的である.この場合、CCDカメラ等を用いて、ホログラム自体がデジタルデータ化さ れている.

図7aに電子線ホログラフィーのホログラム記録時の光学系を示す[7,28]. これは最も簡 便かつ古くから用いられている,1段の電子線バイプリズムを用いたイメージホログラム の記録光学系である.電子線バイプリズムを対物レンズの後焦点面と物面との間に配置し, バイプリズムのフィラメント電極(中央部の極細線電極)の片側(図7aでは右側)を試料 を透過した電子波(物体波)が,他側を試料の無い空間を通過した電子波(参照波)が通 過するように配置する.電子線バイプリズムのフィラメント電極に正電圧を印加すると, 両方の電子線は互いに近づく方向に偏向を受け,電子線バイプリズムの下方で重なり合う. 結果として像面では,試料の像と物体波と参照波による干渉縞が記録される.この干渉縞 には,物体波の位相分布が干渉縞の歪みとして記録されている.ホログラムからの位相分 布の再生とは,この干渉縞の歪みの定量的な検出に他ならない.

電子波の位相に対する磁場の影響は,波動光学による位相項の定式とベクトルポテンシャルに基づく位相項の変調として記述されねばならないが,Aharonov-Bohm (アハラノフ・ボーム)効果の計測[29]など特殊な場合を除いて,式(2)や式(3)で得られた偏向角度を波面の傾斜と捉え,光軸に平行に伝播する波面との差として位相分布を描くことができる.図7bに電子線ホログラフィーによる磁場(磁化)計測を模式的に描く.磁性材料のそれぞれの磁区で偏向を受けた電子線の波面は,その磁化の大きさと膜厚に基づく傾斜を持った波面として再生される.この波面に光軸に平行に伝播する平面波を重畳させると,波面の傾斜に応じた干渉縞が生じる.この再生像の干渉縞は磁力線に対応しており,各々の干渉縞の間に流れる磁束量は、h/e = 4.15×10⁻¹⁵ Wbの一定量となっている.



図7 (a)ホログラムの記録光学系,(b)磁性材料と波面との関係

ホログラフィーを実施するのに十分な可干渉性を持った電子線は電界放出形電子銃とし て、干渉計に不可欠なビームスプリッターは電子線バイプリズムとして、そして干渉計測 のための縞解析方法も再生ソフトとして、複数のものが市販されるに至っている.電子線 ホログラフィーは、現在では特殊な実験手法ではない.しかし、位相はあくまでも相対的 な値でしか求まらないものであり、計測された位相分布を適切な物理量に変換するには、 実験者の知識と経験を要する.ソフトウェアが描いてくれる結果が、正しい物理量、分布 を示しているとは限らない.実験者はコンピュータの出力を鵜呑みにするのではなく、適 切な検討と的確な判断基づき結果を評価しなければならない.これは電子線ホログラフィ ーに限ったことではなく、他の位相計測手法でも同様の注意が必要である.

図8に一例を示す.図8aは薄膜上の強磁性材料(CoFeB)をカーボン(C)と酸化シリ コン(SiO₂)でコーティングした後,収束イオンビーム装置にて針状に加工した試料の走 査型イオン顕微鏡(Scanning Ion Microscope (SIM))像である.いわば,電子線が透過可 能な微細棒磁石である.図8aの中央部の白い帯状部がCoFeB薄膜の側面である.図8b は、図8aとは90°軸回転させた方向から観察したホログラムである.CoFeB薄膜全面を 透過観察している.図8bは2段電子線バイプリズム干渉計[30]によるホログラムのためフ レネル縞は無く,表示の倍率では干渉縞は描画がされていない.そのため,通常の電子顕 微鏡像のごとく表示されている.図8cは図8bから再生された干渉顕微鏡像である.この 干渉縞が磁力線に対応するならば,棒磁石とその周囲の磁場分布として期待された磁力線 分布とは,かなり様子の違った像となっている.検討の結果,これにはSiO₂部のチャージ アップが影響していることが判明した.通常の電子顕微鏡像観察ではまったく問題になら ない程度の,電子数 60 個程度のチャージアップであったが,電子波の位相分布にはその影



図 8 CoFeB 薄膜棒磁石の観察 (a)SIM 像, (b)ホログラム, (c)干渉顕微鏡像(位相差増幅×8)

図9に、チャージアップを確認した原理を示す[31]. 電子線は電場と磁場の両方から同様 の偏向を受けるが、電子線の入射方向が逆転した場合、その影響の現れ方が異なる. すな わち、電場による波面の変調は表裏どちらからの観察でも同じ(図9b)であるのに対して、 磁場による変調は表裏で逆転する(図9a). そこで、まずはじめにホログラムを記録し、 試料を裏返して再度ホログラムを記録する. すると各々のホログラムから再生された位相 分布の差分が磁場による変調成分、加算が電場による変調成分となる. このようにして、 電子線ホログラフィーでは、表裏2枚のホログラムから、電場と磁場の影響を各々分離し て観察可能である.



図 9 磁場と電場による電子波への変調の様子 (a)磁場(磁化)による影響,(b)電場による影響

図10に電場と磁場の分離を行った後の、CoFeB 薄膜棒磁石の磁場と電場の再生位相分 布像を示す.図10aは磁力線分布を表わし、図10bは投影された等電位線の分布を表わ す像となっている.磁力線は棒上部先端の極から下部の極に流れており、確かに棒磁石と して期待された分布となっている.また、電位分布は棒上部先端を中心とした同心円上を 成しており、棒の先端部にチャージアップの中心が存在していることがわかる.電位分布 に関しては、90°軸回転させた方向(図8aと同じ側面方向)についても同様の観察を行い、 SiO2部がチャージアップの原因となっていることを突き止めた(図10c).

図10で観察された電子波の位相分布(位相差の大きさ)から、CoFeB 薄膜棒磁石の磁 束量とチャージ量がそれぞれ求まる.その値は、磁束量については 2×10⁻¹⁵ Wb、電荷につ いては 1×10⁻¹⁷ C であった.すなわち、この試料は、およそ磁束量子1個分の磁束を持ち、 電子約 60 個分のチャージアップを伴った棒磁石であることが同定された.このように、定 量解析が可能な点も、電子線ホログラフィーの特徴である.



図10 磁場/電場の分離後の干渉顕微鏡像(位相差増幅×8) (a)磁場分布像,(b)電位分布像,(c)電位分布像(側面観察)

2.7 その他の手法

以上述べた手法以外に、磁性観察が可能な2、3の手法を簡単に紹介する.

近年,強度輸送方程式法(TIE)[9]を用いた手法が磁性材料の観察に利用され始めている[32]. この方法は,インフォーカス像を挟んでオーバー側,アンダー側に等しいデフォーカスを持つ都合3枚の画像から,強度輸送方程式に基づきインフォーカスでの波面の位相分布を求める手法である.電子線のドーズ量に対して線形性の高い CCD カメラなどの検出

器が利用できるようになって実用化された.技術的にデフォーカス像を用いる点は Fresnel 法に,位相分布が得られる点はホログラフィーに通じるものがある.また,複数枚の画像 から位相分布を演算処理によって求める点は,能動型画像処理法[33,34]や3次元伝達関数 (OTF)法[35]とも似た特徴を持っている.但し,基づく理論はこれら画像処理法とは異な っている.デフォーカス像では厳密にはそれぞれ倍率が異なっているため,これらの修正 が必要であること,デフォーカス量に応じて最終的に得られる分解能が異なることなどに 注意が必要である.演算処理により求められる位相分布について十分な検討が必要な点は, ホログラフィーと同じである.

上記に述べた能動型画像処理法や3次元伝達関数(OTF)法においても、手法の持つポ テンシャルとしては磁性材料の観察に適用可能である.しかし、現状のこれら処理法は高 分解能観察を主目的に開発されているため、各々の画像のフォーカス変調量が小さいが、 フォーカス変調量を大きくできれば、原理的には磁性観察が可能であろう.もちろん、試 料を磁場に浸漬しないための工夫は必要である.

また,結像レンズを一切用いず,回折パターンから演算処理によって実空間の試料像を 求める回折顕微鏡法[36,37]も磁性観察に対してポテンシャルを持っていると考えられる. それは,周回計算の結果最終的に確定される位相分布は,そのまま試料を透過した電子線 の位相分布に対応していると考えられるからである.この手法では,そもそも電子レンズ を用いていないため,電子レンズの磁場が試料に与える影響は無い.但し,演算精度向上 のために試料像を利用する場合[38]には,他の手法と同様の磁場対策が必要となる.また, 磁性材料による微細な磁気偏向を捉えるためには,歪のない小角回折の光学条件が前提と なる.

3. 実験装置

前節で述べたとおり、磁性観察には電子線の小さな偏向角度の可視化,あるいは電子波 の位相分布の可視化が必要である.そのため、ホログラフィーなど電子線の位相を取り扱 う手法に適した電界放出形電子顕微鏡の利用は、コントラストの良い観察像を得るには有 効である.その上で、磁性観察に特化した、手法や装置上の機構・機能が必要となる.最 も簡便な方法は、対物レンズをオフすることである.しかし、オフするだけでは対策とは 言い難い面もある.そこで、以下の装置等が工夫されている.

3.1 磁気シールドレンズ

通常の対物レンズは、収差を抑えるため試料を強磁場中に浸漬するように設計されている. すなわち、対物レンズポールピースの中央部に試料が挿入されるが、磁性観察用の磁気シールドレンズでは、対物レンズの磁場分布が試料位置から外れるように設計されている[12, 13]. 図11に磁気シールドレンズの断面と試料位置の関係を示す[39]. 試料を迂回するようにポールピースの磁路が作られ、試料位置での残留磁束を、通常の磁性材料観察には問題の無い程度に小さく抑えることが可能である. しかし、極端に磁場を嫌う試料については注意が必要である. この装置構成では、試料と対物レンズとの位置は比較的近いため、倍率は数万倍から数十万倍、空間分解能 1 nm 程度を得ることは可能である.

試料位置での磁場分布がゼロとなる様に基本設計されているため,実験時に試料に磁場 を印加するためには,別途磁場印加装置が必要となる.しかし空間的な制約が大きく,磁 場印加装置との併用は一般的には成されていない.また,磁気シールドレンズに換装した 場合,ローレンツ顕微鏡として磁性観察に特化した装置と成ってしまうため,高分解能観 察,走査透過型観察,X線分析などには大きな制約が生じる.



図11 磁気シールドレンズ[39]

3.2 レンズ外試料配置法

図12に示す様に、試料を対物レンズの磁路から外して、実効的に磁気シールドレンズ (図11)と同様の配置を作り出すことも可能である[10].この場合、試料像観察のために は、対物レンズを弱励磁(長焦点)で使用する、あるいは、対物レンズ下部にミニレンズ など専用の長焦点型レンズを配置する[11]などの使用法が必要となる.いずれも、技術的に 困難なものではない.

トップエントリー型試料微動機構の場合には,試料ホルダーの筒を短くしたり,ホルダ ー上部に試料をセットするなどの工夫により,容易にこの構成を作り出すことができたが, サイドエントリー型試料ホルダーでは,電子顕微鏡鏡体外部に微動機構が設置されること が多く,図12に示したごとく磁性観察専用の試料微動機構が必要となる.しかし,微動 機構の取り付け位置を適切に選べば,通常の試料微動機構との併設(ダブルステージ法[40]) が可能であり,電子顕微鏡の汎用性を保つことが可能である.但し,X線分析などには制約 の生じる可能性がある.



図12 試料の磁路外配置とダブルステージ構造[39]

3.3 磁場印加装置

磁性観察においては試料を磁場に浸漬させないだけでなく,実験の目的に応じて試料内 の磁気構造の外部磁場応答を観察する必要が発生する.そのため,極性,強度,方位をコ ントロールして磁場印加できる装置が望まれる.例えば,光軸方向への磁場印加は,対物 レンズを弱励磁するなどの手法で簡便に実現できる.しかし,光軸に垂直方向の磁場印加 は,外部印加磁場が電子線を大きく偏向させてしまうため,光軸に振り戻す補正機構を併 せ持たねばならない.そのため,試料への磁場印加装置が別途開発されている.

図13aに3段の構造を成す磁場印加機構[41,42]と電子線の偏向の様子を示す.上段コ イルの磁束密度 B により角度 θだけ光軸から離れる方向に偏向を受けた電子線は、中段コイ ルの磁束密度 - 2B により角度 - 2θだけ光軸方向へ戻る偏向を受け、さらに下段コイルの磁 東密度 B により再度角度 θの偏向を受けて光軸に沿う方向に戻される.試料を配置する位置 は、上段コイルの磁場中 S₁、中段コイルの磁場中 S₂、下段コイルの磁場中 S₃の3箇所が可 能である.それぞれに利点と欠点があり、例えば中段コイルの磁場中 S₂に試料を配置した 場合には、装置性能上最大の磁場 2B が印加できる利点を持つが、印加磁場の変更により電 子線が試料を透過する位置が大きく変化してしまう.そのため、印加磁場を変えるごとに 試料の観察位置を合わせ直す必要がある.上段コイルの磁場中、または下段コイルの磁場 中(S₁,S₃)に試料を配置した場合には、印加磁場の変更に伴う電子線の透過位置の変化 は小さいが、印加磁場強度は装置が発生可能な最大磁場の半分に低下する.一般には、試 料の着脱の容易さから、試料は上段コイルの磁場中の位置 S_1 に配置されることが多いが、 中段と下段の2回大きな偏向を受けるため試料像に歪が入りやすい. 像質を優先させるな らば下段コイルの磁場中 S_3 に配置する方が良い. なお、図13では作図の都合上、印加磁 場の方向に電子線が偏向されるように描いているが、Lorentz 力は磁場の直交方向に作用す るものであり、実際の電子線の偏向方向は紙面の表裏の方向である.



図13 磁場印加機構と電子線偏向の様子, (a)3段磁場印加機構, (b)5段磁場印加機構

図13bに5段構造の磁場印加機構[43,44]を示す.この機構では,試料は中央部の第3 コイルの磁場中 S₅に配置される.5段磁場印加機構の特徴は,試料の上側,下側にそれぞ れ2段の振り戻しコイルを持ち,電子線が試料位置 S₅を中心に上下対称の軌道を描く点で ある.この構成により,装置の発生させる最大磁場が試料に印加できるとともに,印加磁 場強度によらず電子線は原理的に光軸上を光軸と平行に試料を透過する.機構のサイズは 大きくなるが,3段磁場印加機構の欠点に対して原理的な解決が成されている.さらに, 光軸方向への磁場印加コイルを追加し,試料に対して全方位に磁場を印加する機構を備え ることも可能である.

開発された全方位磁場印加機構のコイル構成を図14aに示す. 試料への磁場印加は, X,Y,Z それぞれの軸方向に Helmholtz 型の空心コイルペアを用い,6つのコイルの中心部に 試料を配置する.Z 軸を光軸と一致させ,Z 軸方向磁場印加コイルの中空部を電子線が通過 する. 試料はサイドエントリー型冷却試料ホルダーにセットし,Y 軸に沿ってコイルの中空 部を通って光軸まで導入する.Helmholtz 型のコイルペアであるため,試料に印加される磁 場がほぼ平行である点は実験条件として望ましいが,磁場の印加されている空間が大きい ため,電子線は長距離に渡り磁場中を伝搬することになり偏向角度が大きくなる.そこで, 電子線を光軸上へ振り戻すための制御の精度向上のため、試料上下の振り戻し機構内に補助コイル(BD2-subコイル4個,BD3-subコイル4個)が追加され、全体で30個のコイルから構成される機構となっている.なお、発生させる磁場強度に対する装置サイズを小さくするため、ニオブチタン(NbTi)超伝導線材を使用するとともに、偏向系(BD1~BD4)には、磁性体リングに4個のコイルを巻きつける環状コイル構造が採用されている.



図14 全方位磁場印加装置[43], (a)コイルの構成, (b)開発された装置のカットモデル

図14bに実際に試作された全方位磁場印加装置のカットモデルを示す.各コイルに超伝 導線材を使用するため3槽からなる輻射シールド構造であり,全コイルを設置した最内槽 と中間槽が液体ヘリウム(LHe)により冷却され,最外槽が液体窒素(LN₂)で冷却される 構造である.各槽に高純度の銅材が用いられ,槽表面は酸化防止のため金メッキが施され ている.この全方位磁場印加装置は,超伝導磁束量子観察[16,17]のための磁場印加機構と して開発されたため,輻射シールドと熱伝導については細心の注意が払われている.通常 の磁性観察を目的とする磁場印加装置としてならば,これほどしっかりした輻射シールド は必要ないと思われる.

以上の2例は,光軸上を伝播してきた電子線が,磁場印加装置を透過後,再び光軸上を 伝播していくため,基本的には電子顕微鏡本体への影響はなく,独立した付属装置として 取り扱うことが可能である.

一方,磁場印加装置の汎用性と簡便性を重視した試料ホルダーとの一体型[45]を成す磁場 印加装置も開発されている.とりわけ,試料ホルダーの磁場印加装置と顕微鏡本体の偏向 システムとを同期させることで交流磁場に対する磁区構造の変化が動的に観察できる[46] など,特色ある利用が成されている.但し,これらの装置では,試料上の観察位置を変更 するたびに光学系を再調整する必要がある.

- 4. 最近の観察例
- 4. 1 Lens-less Foucault 法 (Lens-less Foucault Imaging (LLFI)) [19]
- 4. 1. 1 Lens-less Foucault 法の光学系

Lens-less Foucault 法[19]は、小角電子回折パターンの観察とそのパターンを構成する小 角回折スポットを観察できる手法であるが、磁気シールドレンズを備えない、通常の高分 解能電子顕微鏡を磁性観察に利用する手法として開発されたため、通常位置(対物レンズ ポールピース内)に試料を配置するとともに対物レンズをオフした状態で使用することが 前提とされている.図15にその光学系を示す.対物レンズをオフにした状態で、照射光 学系により、制限視野絞りの位置とクロスオーバーの位置を一致させる点に特徴がある. この状態では、制限視野絞りの位置が試料にとっての逆空間となっており回折パターンが 形成される.すなわち、制限視野絞りを対物絞りのごとく角度制限絞りとして利用するこ とが可能となる.

試料の Foucault 像を観察する際は,図15aに示すごとく対物レンズより下方の結像レンズを弱励磁とし試料の像を結像する.この結像レンズの作用は,磁束量子観察時などと同様に縮小結像である.そのため,後段の結像系によって試料の像を拡大するが,光学系としての最大倍率は通常の4段結像の電子顕微鏡で1万倍程度となる.

制限視野絞りを角度制限絞りとして電子回折パターン中の適切な位置に配置するために は、回折パターンを拡大した状態、すなわち大カメラ長で観察する必要がある.図15bに Lens-less Foucault 法での回折パターン観察光学系を示す.図15aの試料像観察時と比較 して、結像レンズを強く励磁し、制限視野絞り位置を拡大して後段の結像系に伝播する光 学系である.試料位置から制限視野絞り位置までの距離が、電子線が直接伝播することに より得られるカメラ長に該当する.通常の透過型電子顕微鏡でおよそ100~200 mm である. このカメラ長を後段の結像系によって拡大し、キロメートルオーダーの大カメラ長を得る ことが可能である.すなわち、Lens-less Foucault 法では、小角電子回折が同時に実現可能 である.

照射光学系を結像作用に用いたため、試料への照射領域の調整自由度に制限が生じる欠 点があるが、これに対してはコンデンサ絞りを照射領域制限絞りとして利用する、あるい は対物絞りを視野制限絞りとして緩用する、などの対策が採られている.



図15 Lens-less Foucualt 法の光学系[19] (a)Foucault 像観察光学系,(b)小角回折パターン観察光学系

図15aの光学系では、角度制限絞り(従来の制限視野絞り)を用いず、結像された像の フォーカスをはずすだけで Fresnel 像が得られる. すなわち、Fresnel 法も同時に実現可能 な光学系である. 図16に Fresnel 法による観察例を示す. 試料はマンガン酸化物 (La_{0.75}Sr_{0.25}MnO₃ (LSMO)) [47]である.

4.1.2 180° 反転軸構造の観察

図16aはアンダーフォーカス(不足焦点)像, bはインフォーカス(正焦点)像, cは オーバーフォーカス(過焦点)像である.各々の像中の帯状の模様は等傾角干渉縞であり, 図16中に観察される等傾角干渉縞の断裂により試料の双晶境界がわかる.そして,図1 6a, c で観察される磁壁(白または黒の線状コントラスト)は、ほとんどが双晶境界に沿 っていることがわかる.このように、Lorentz法、とりわけ Fresnel 法では、磁区構造と結 晶構造との関係の知見を得ることが容易である.



図16 Fresnel 像の観察結果[19] (a)アンダーフォーカス像, (b)インフォーカス像, (c)オーバーフォーカス像

図17に図16と同じ場所の Lens-less Foucault 法による観察例を示す.図17aは小角 電子回折パターンである. CCD 記録時のカメラ長は148 mで, Bragg 回折パターン観察時 の200倍程度の拡大像に該当する.図17aでは、回折スポットがストリークを引きながら 2つに分離している様子がわかる.このストリークは、180°反転磁区境界が Bloch (ブロ ッホ)磁壁となっていることを示している.図17bは aの左上側の回折スポットから観察 された Foucault 像、図17cは右下側の回折スポットから観察された Foucault 像である. それぞれ双晶境界を境にコントラストが反転しており、磁区が交互に入れ変わる180°反転 磁区構造となっていることがわかる



図17 Lens-less Foucault 像の観察結果[19] (a)小角電子回折パターン, (b)Foucault 像 (左スポット), (c)Foucault 像 (右スポット)

4.1.3 90/180°磁区構造の観察

図18aに同じ試料中に見出され90°/180°磁区構造のFresnel像,および,図18b に a の観察領域(90°/180°磁区構造の部分に制限)から得られた小角電子回折パターン を示す.すなわち,図18bに観察されたスポットの分離は,結晶や磁区の周期構造による 回折効果ではなく,試料内の磁束(磁化)による偏向を観察したものである.厳密には, 図18bは回折パターン(diffraction)ではなく偏向パターン(deflection)である.図1 8aのFresnel像による磁壁の白,黒の線状コントラストの分布,および図18bで回折(偏 向)スポットが正方形状の4つに分離していることから,90°/180°磁区構造であること が確認される.(但し,厳密に磁区構造を決定するには,LSMOの菱面体構造の結晶角度と 観察方位との関係を考慮しなければならない.)各々の磁区の磁化方向を図18a中に矢印 で示した.矢印の色は,次の図19と対応付けている.

図18bの回折(偏向)スポット間の直線状のストリークは、図17aと同様のBloch磁 壁を反映したものである.一方,一部に観察される曲線状のストリークは、試料薄膜面内 の磁化の回転を反映したものと考えられ、磁壁の一部がNéel(ネール)磁壁に類似の回転 構造をとっていることが推定される.但し詳細は別途検討が必要である.また、右上から 左下の回折スポット間には明確なストリークが観察されないが、これは該当する磁壁が存 在しないことによる.



図18 90°/180°磁区構造の観察結果[19], (a)Fresnel 像, (b)小角電子回折パターン

図19に図18と同じ場所を含む広範囲の Lens-less Foucault 像の観察結果を示す.こ れは、4つの回折(偏向)スポットからそれぞれ4枚の Foucault 像を記録した後、磁区が 明確になる様に色分けして1枚の画像に再構成した像である.磁化の方向とその磁区(磁 化の方位)との関係を色スケールに現わしている.それぞれの回折(偏向)スポットと Foucault 像観察時に取り込んだ回折パターンの範囲を挿入図に示す.この回折パターンも 4枚の回折パターンと図18bからの再構成像である. Foucault 像から明らかな様に, 磁区(赤)と磁区(紫)との境界領域,および磁区(緑)と磁区(青)との境界領域はほとんど存在しない. これが,右上から左下の回折スポット間にはストリークが観察されない理由と考えられている.



図 1 9 90°/180° 磁区構造の Lens-less Foucault 像[19] 4 枚の Foucault 像から再構成された像である.(挿入図:再構成回折パターン)



図20 90°/180°磁区構造の観察結果 (a)インフォーカス像, (b)磁壁の Foucault 像, (c)Fresnel 像 (アンダーフォーカス), (d)Fresnel 像 (オーバーフォーカス)

4.1.4 磁壁の観察

また, Lens-less Foucault 法によれば,回折(偏向)スポット間の磁壁を透過した電子線 を結像することも可能である.図20に,90°/180°磁区構造での,Foucault 像観察結果 を示す.試料は先と同じマンガン酸化物系材料 La_{0.75}Sr_{0.25}MnO₃(LSMO)である.図20a はインフォーカス像であり,図中の黒線は等傾角干渉縞である.等傾角干渉縞の断裂部(図 中右上から左下にかけて4本の直線)は,双晶境界である.図20bは,90°/180°磁壁の Lens-less Foucault 像である.図中央部のジグザグ線が180°磁壁,左右の水平方向の磁壁 が90°磁壁である.90°磁壁が双晶境界とほぼ一致していることがわかる.図20c,dは 同領域の Fresnel 像である.cがアンダーフォーカス像,dがオーバーフォーカス像である. 図20bの磁壁の Foucault 像と Fresnel 像での磁壁の白黒の線状コントラストは形状がよ く一致しており,90°磁壁であっても Foucault 像観察が可能であることが分かる.また, 180°磁壁のジグザグ線の上から2つ目の角部は,双晶境界から位置がずれているが,その 様子も磁壁の Foucault 像, Fresnel 像共によく一致している.

図21に、磁壁の Foucault 像と小角回折パターンとの対応を示す実験結果を示す.図2 1aは、90°磁区構造からの偏向スポットを除外して結像した Lens-less Foucault 像であ る.図21a右下に挿入された回折パターンのうち、ちょうど円で囲まれた領域を取りこん で結像された像である.図21bは、回折パターン中央部(原点)を通るクロスしたストリ ークのみを選択結像した Foucault 像である.結像に用いたストリークは、光軸(原点)を 通るストリークであり、直交する180°磁壁による回折パターンである.すなわち、Foucault 像の中央部のジグザグ状の磁壁に対応している.図21cは右側回折スポットを縦に結ぶス トリーク(光軸(原点)を通らない)による Foucault 像で、図21中左側の90°磁壁に対 応している.同様に図21dは、左側回折スポットを縦に結ぶストリーク(同じく光軸(原 点)を通らない)による Foucault 像で、図21中右側の90°磁壁に対応している.90° 磁壁は、いずれも双晶境界に位置していることが特徴である

このように Lens-less Foucault 法は, Foucault 像と小角回折パターンの両方を観察する ことが可能なだけでなく,狭角度域に限定した偏向電子線の結像により,磁壁の直接観察 が可能な光学系である. Fresnel 法では得られなかった角度と位置の対応関係の知見を,像 として観察することができる. Lens-less Foucault 光学系は,十分な適用範囲,応用対象を 持った Lorentz 顕微鏡法にとって重要な光学系だと考えられる.



図21 90°/180°磁壁の観察結果

(a)全磁壁の Foucault 像, (b) 180°磁壁の Foucault 像, (c) 90°磁壁(左側)の Foucault 像, (d) 90°磁壁(右側)の Foucault 像. 挿入図はそれぞれの Foucault 像の回折パターン

4. 2 Twin Foucault 法(Twin Foucault Imaging (TFI)) [18]

Foucault 法でのコントラストの成因は、観察しない磁区を透過した電子線の遮蔽による ものであり、Foucault 法は『一部の情報を捨てる』ことによってコントラストを得る手法 である(図3参照).そのため、例えば、結晶粒界など複数の磁区に渡った対象を観察する 場合には、対物絞りを調整し直して、逆コントラストの Foucault 像を別途観察するか、対 物絞りを光軸から外して通常の電子顕微鏡像を合わせて観察しておく必要があった.すな わち、複数回の観察が必要で、動的観察、実時間観察などはほぼ不可能であった.この課 題に対して、対物絞りによる既偏向電子線の取捨選択ではなく、電子線バイプリズムを用 いた既偏向電子線の過偏向、または不足偏向による分別結像光学系が考案されている.Twin Foucault 法である[18].

4.2.1 Twin Foucault 法の光学系

図22に Twin Foucault 法の光学系を示す. 図では簡略化のため照射光学系, 拡大結像 系は省略し, 光源 (クロスオーバー), 試料, 対物レンズ, 電子線バイプリズム, 像面の構 成を示している. 光源から放出された電子線は, 照射に際して照射光学系により試料への 適切な電子密度, 照射範囲となるように調整される. 試料の所定の領域を照射した電子線 は, 試料内の例えば反転磁区構造などにより2方向の異なる方位に偏向され, 対物レンズ の下側に2つの分離された光源の像を結ぶ. 対物レンズによるクロスオーバーの近傍に配 された電子線バイプリズムにより電子線は改めて偏向を受け, それぞれの偏向方向に応じ た試料の像を個別に結ぶ. 図22aは電子線バイプリズムに負の電圧を印加 ($V_f < 0V$) し, 両クロスオーバーからの電子線が互いに重ならないように偏向 (不足偏向) している. 一 方, 図22cは電子線バイプリズムに正の電圧を印加 ($V_f > 0V$) し, 両クロスオーバーからの電子線が互いに重ならないように偏向 (過偏向) を与えてい る. 近軸近似の範囲内では, 図22aと図22cでは, 得られる2つの像の位置の左右が入 れ替わるだけで同じ結果を得る. 図22bは, 電子線バイプリズムへの印加電圧をゼロとし た場合 ($V_f = 0V$) で, 通常の電子顕微鏡像を得ることができる. 図22bの構成によれば, 電子線バイプリズムを挿入したまま, Fresnel 像の観察も可能である.

図22では電子線バイプリズムが対物レンズの作り出す光源の像面に配置された例を示 しているが,両クロスオーバーの間の電子線の陰の空間であれば,光学系上は試料の物面 と像面を除きどの位置でも同様の結果を得ることができる.電子顕微鏡の機械的位置構成 などを勘案して,電子線バイプリズムの設置位置を定めれば良い.いずれの位置において も,機械的,空間的に設置可能な電子顕微鏡の装置上のスペースがあることと,電子線バ イプリズムのフィラメント電極の太さが陰の空間内に収まることが必要である.一般に, 陰の空間サイズは試料像の拡大とともに逆に縮小されていくので,例えば図22に示した ように,対物レンズによる光源の像面近傍などが妥当と考えられる.

図22のように Twin Foucault 法における電子線バイプリズムの利用は,従来の電子線 ホログラフィーなど干渉法とは本質的に異なり,2つの像をそれぞれ個別に結像する目的 で,2方向の電子線を空間的に分離させるために使用される.したがって,基本的に本観 察法は,電子線の可干渉性に依存しない



図 2 2 Twin Foucault 法の光学系[18], (a) $V_{\rm f} < 0$ V, (b) $V_{\rm f} = 0$ V, (c) $V_{\rm f} > 0$ V

4.2.2 Twin Foucault 法の観察例

図23に180°反転磁区構造の小角回折パターン(106K)を示す. 試料は先の実験と同種のマンガン酸化物系の材料 La_{0.825}Sr_{0.175}MnO₃を用いた.本試料は190K以下で常磁性から強磁性へ相転移し,強磁性相では180°反転磁区構造をとることが知られている[48].

図23では回折(偏向)スポットがストリークを引きながら2つに分離している様子が わかる.このストリークは,180°反転磁区間が Bloch 磁壁となっていることを示している. 分離したスポット間の中央部の縦方向の黒い帯状のコントラストが,挿入された電子線バ イプリズムのフィラメント電極の像である.電子線が透過しないため,黒いシルエットと なって観察されている.



図23 LSMO 系材料の180°反転磁区構造の電子回折パターン(106K)[18]

図24は電子線バイプリズムのフィラメント電極への印加電圧を変化させたときに観察 された試料の像である.それぞれの印加電圧 V_f は、図24(a)は-100V,(b)は-50V,(c) は 0V,(d)は+50V,(e)は+100V である.図24(a),(c),(e)がそれぞれ図22(a),(b), (c)の光学系に対応している.図24(a),(e)の左右の Foucault 像では縦方向のストライプ 状のコントラストが反転していることから、ストライプが磁区構造によるものであること, 図24(c)より曲線状の縞模様が等傾角干渉縞など試料固有のコントラストであることがわ かる.図24(c)の電子顕微鏡像が、フィラメント電極への電圧の印加に伴って、それぞれ の磁区を透過した電子線による Foucault 像に変化していく様子がわかる.2つの Foucault 像を分離するために印加しなければならない電圧 V_f は観察領域の大きさ依存しており、観 察したい領域が十分に分離されるだけの電圧を印加できればよい.印加電圧が正負どちら の電圧でもよいことは、図24(a)と(e)で、左右の Foucault 像が入れ替わっているだけであ ることから明らかである.

図24(a), (e)の左右の Foucault 像は, 全く同じ入射電子線による全く同時結像の2枚の 画像である.しかも,この2枚の Foucault 像で,電子線の偏向に関しては試料の観察範囲 の全情報を網羅できている.したがって従来の Foucault 法では困難であった,視野の全範 囲の観察と動的観察/実時間観察の両立が可能である.このように Twin Foucault 法では, 1つの入射電子線により同時結像されたことなる情報を持った対画像を得ることができる. これは新しい概念である.



図 2 4 電子線バイプリズムへの印加電圧 V_f による Foucault 像の変遷[18] (a) $V_f = -100V$, (b) -50V, (c) 0V, (d) +50V, (e) +100V

さらに、この全く条件を一にする2枚の画像を減算処理することによって、差分像とし て磁区コントラストのみの抽出が可能である.図25(a)、(b)はそれぞれ図24(a)の左右の Foucault 像である.この2枚の画像間の減算処理を行った.図25(c)は図25(a)から(b) を減算した画像(差分像)、図25(d)は図25(b)から(a)を減算した画像(差分像)である. 減算後の画像の強度ゼロが中間調となる様に全体の表示の際の明るさを調整している.図 25(c)も(d)も、試料が固有に持つ欠陥や背景の等傾角干渉縞が除去され、磁区によるスト ライプ状のコントラストのみが強調された画像となっている.図25(c)と(d)とではコント ラストが反転していることから、隣り合うストライプ構造が互いに逆向きの磁化を持つ磁 区であることがわかる.以上のように、Twin Foucault 法では全く同一条件で記録された2 枚の画像に簡単な処理を施すだけで、目的の磁区構造を低ノイズで高精度に観察すること が可能である.



図25 Twin Foucault 像からの磁区構造抽出例[18]

(d) 減算処理像(b-a)

本手法では,差分像だけでなく合算像についても簡単な処理が可能である.図26に合 算像についての試行結果を示す.図26aは図24cの電子顕微鏡像,bは図24aの左右 のFoucault像の合算像(図25a,bの和)である.図26aとbを比較すると,Foucault 像での磁区を表すストライプ状のコントラストが消失し,通常の電子顕微鏡像とほぼ一致 している. すなわち,本手法では図24aまたはeのTwin Foucault像を記録しておけば, 改めて電子顕微鏡像を撮影する必要はない. これは全偏向方向の情報を得ている利点によ るもので,実験の効率化だけでなく,同一性・同時性に於いて優れていることを示してい る.



図26 (a) 従来の電子顕微鏡(図6c), (b) 合算による電子顕微鏡像(図7a+b) [18]

以上の様に、Twin Foucault 法では、全く同一の入射条件で同時に2枚の Foucault 像が 得られていること、従来の Foucault 法よりも擬似的に高い空間分解能で磁区を観察できて いること、磁区コントラストのみを可視化できること、電子線バイプリズムへの印加電圧 のコントロールだけで光学系を修正することなく、Foucault 像と通常の電子顕微鏡像を得 られること、Fresnel 法にも適用できることなど、従来の Lorentz 顕微鏡法には無い利点を 有している.

4. 3 分離照射型電子線ホログラフィー[49]

電子線ホログラフィーは、電子波の可干渉距離の範囲内でしか実現できない.電界放出 形電子銃により実現はされたが、ホログラフィー光学系の構築に当たっては、観察したい 試料の領域とその際の位相分布に許容される SN 比などを考慮して、記録するホログラムの 大きさ、空間分解能等を定める必要がある.磁性観察においては、一般的には、フィラメ ント電極直径の数倍から 10 倍程度の可干渉領域を限界とし、この範囲内に物体波と参照波 を収めなければならないため、記録されるホログラムの大きさ(干渉領域幅)は 2-3 µm であり、物体波(試料透過領域)と参照波(真空透過領域)は隣接していなければならな かった.すなわち、磁性材料を観察する際には、参照波への試料からの漏洩磁場の影響は、 調整が困難であった. 最近,これら物体波と参照波の位置関係に対する制約について,照射系にバイプリズム を配置し,電子線のコヒーレンスを保ったまま,物体波と参照波の位置を分離する手法が 開発された.分離照射型電子線ホログラフィーである[49].電子波の可干渉性を高めて広領 域のホログラフィー観察を可能にする技術ではないが,電子波の可干渉性の不足が抱えて いた課題を実用上解決する手法として注目されている.

4.3.1 分離照射型電子線ホログラフィーの光学系

図27に2段電子線バイプリズム干渉光学系(図27a)と分離照射型ホログラフィー光 学系(図27b)を示す.この図はレンズとその結像作用を省略し,電子線バイプリズムと その照射領域だけに注目して描画した模式図である.分離照射型ホログラフィーでは,2 段電子線バイプリズム干渉光学系[30]を前提とするため,図27bには全部で3段の電子線 バイプリズムが描かれている.試料上側のコンデンサ電子線バイプリズムにより照射電子 線が2波に分離され,左側が物体波に,右側が参照波として,それぞれ試料面上の照射領 域と参照波領域の位置がコントロールされる.これにより,従来のホログラフィーでは成 し得なかった,試料端から奥まった領域のホログラフィー観察が可能となった.また,参 照波についても同様の効果があり,例えば,試料から遠く離れた空間を伝播する波を参照 波として利用可能となり,電磁場などの参照波への影響を低減できる効果が期待されてい る.

4.3.2 分離照射型電子線ホログラフィーによる観察例

分離照射型ホログラフィーによる電磁鋼板の観察例を図28に示す. 図28は, FIB に より薄膜化した試料の低倍の Fresnel 像である. 試料の図中上端から4 µm, 左端からは9 µm 離れた位置に孔が人工的に作られている. この孔は, 磁壁のピニングセンタとして作用 することが期待されるもので, 孔の近傍に明線で観察される磁壁が位置している.

この孔の周辺の磁束線分布の観察は、従来のホログラフィーでは電子波の(実用的な意味での)コヒーレンス距離を超過しているため極めて困難であった.しかし、分離照射型 電子線ホログラフィーによれば可能である.図中左端の空間に参照波領域(破線枠内)を 確保し、孔位置(実線枠内)を物体波領域としてホログラムが記録された.



図27 分離照射型電子線ホログラフィーの光学系[49] (a)従来の電子線ホログラフィー干渉光学系,(b)分離照射型ホログラフィー干渉光学系



図28 FIB 加工された電磁鋼板の低倍 Fresnel 像[49]

図29は、孔周辺部の拡大された Fresnel像(図29a)とホログラムから再生された磁 束線分布図(図29b)である.図29aでは、磁壁(明線)は孔の近傍で上に凸の曲線を 描いていることがわかる.図29bでは、孔の周囲を磁束線が迂回している様子がわかる. また、磁壁の部分では磁束線が逆方向に折り返されている様子が描かれている.孔の上下 での磁束線間隔に違いがあるが、これは孔周辺の試料厚さの変化に伴う電位分布の影響が 重畳されている結果ではないかと推定される.いずれにしても、試料端から9µm奥まった 領域のホログラムで、これほどSN比のよい再生像が得られるのは、この光学系の利点であ る. 今後, 様々な領域での電子線ホログラフィーの応用を広げる手法となると期待される.

なお、図29bの再生結果には目立たないが、図27bの光学系では、照射系電子線バイ プリズムのフィラメント電極から発生したフレネル縞が試料に投影されてしまうため、結 果として2段電子線バイプリズム干渉計[30]の持っていたフレネル縞の発生回避の利点が 失われている.この課題に対しては、照射系の電子線バイプリズムを2段とし、照射系で も結像系と同様の2段電子線バイプリズム干渉計を構築することでフレネル縞の発生を抑 制する2段バイプリズム型分離照射ホログラフィーが開発されている[50].照射系にバイプ リズムを2段構える光学系は、電子顕微鏡では一般的なものではないが、電子線干渉を目 的とする緩衝装置にとっては、今後スタンダードな構成になっていくと推定される.



図29 分離照射型電子線ホログラフィーによる磁性材料の観察例[49]
(a)Fresnel 像, (b)磁束線分布像(位相差増幅×1倍)
4. 4 電子線ホログラフィー/トモグラフィーによる3次元空間磁場の再構築

前節までにいくつかの磁区境界(磁壁)の観察例を紹介したが、これらの観察例は電子線の伝播方向に2次元投影したものであった.実際の磁石材料では、磁壁は3次元構造をとり磁気的に複雑な相互作用をしている.しかも、この領域の磁気的性質が磁石としての物性・性能に重要な役割を担っている.すなわち、磁場分布の3次元構造の計測は、材料的にも重要な研究ターゲットである.ここでは、電子線ホログラフィーとトモグラフィーの技術を融合させた3次元空間の磁束分布計測[51,52]について紹介する.

4.4.1 電子線ホログラフィー/トモグラフィーの実験方法

図30は一般的な電子線ホログラフィー/トモグラフィー実験の概要を示す模式図である. 針状に加工された試料(図30は磁性材料を例として描かれている)の長軸を回転軸とし て一定角度ずつ回転させて,その各々のホログラムを記録する.全てのホログラムを再生 し,例えば磁場分布や電位分布など所定の物理量に変換した後,通常のトモグラフィーの 像再構築手法に基づいて処理され,3次元の物理計測を完了する.



ホログラム

図30 電子線ホログラフィー/トモグラフィーの実験系

電位分布については、電位はスカラー量であり、Radon 変換に基づくトモグラフィーの 像再構築手法がそのまま適用可能である[53]. 一方、磁場分布については、磁束がベクトル 量であるため、空間の一点について3方向のデータを計測しなければならない[54]. このた め、基本的には3方向の回転軸を必要とするが、磁束については Maxwell 方程式(div *B*=0) に基づいて、2方向成分が定まれば残る1方向成分は計算により求めることが可能である. しかし、この場合でも観察に際しては回転する2軸が必要であり、実験的にはかなり困難 なものとなる. ところが、空間の磁束分布だけならば、電子線の伝播空間中の透磁率が1 通りのみであるため、回転軸の直交方向について回転角度から三角関数に基づいて定める ことが可能である. すなわち、空間磁束の分布についてならば、1軸回転のみの実験から 3次元空間磁場の再構築が可能である[55]. 以下に1軸回転ホルダーによる空間磁束分布の 3次元観察結果について紹介する.

4.4.2 電子線ホログラフィー/トモグラフィーによる観察例

図31に、電子線ホログラフィー/トモグラフィーに用いられた一連のホログラムを示す. 試料は先述の強磁性体 CoFeB である.回転角度 10°ごとに 0°から 170°までの18枚の ホログラムを表示している.実験では予め SiO2部のチャージアップを防ぐため白金パラジ ウム (PtPd)を蒸着し、さらに回転角度 10°ごとに 0°から 350°までの36枚のホログ ラムを CCD カメラでデジタル記録した.像再生に当たっては、表裏の関係にある2枚のホ ログラムから、先述の方法で電場分布を除去した.図32に18枚の再生磁束分布を示す. 針状試料先端の空間にのみ注目した再生像で、位相差増幅は8倍である.



図31 薄膜棒磁石 (CoFeB) のホログラム



図32 薄膜棒磁石先端部の再生磁束分布(位相差増幅×8倍)

図33は、18枚のデータより3次元再構築された磁束分布である.針状試料先端部の 軸垂直平面上の磁束分布をベクトル表示している.磁束は磁石薄膜の部分で大きく湧き出 し、周辺部に至るほど強度の低下とともに下側の極に向かって方向が変化していく様子が 再構築されている.



図33 3次元再構築された磁束分布(棒磁石の軸垂直面内分布について)

図34は、図33と垂直な3枚の平面上(a,b,c)の磁束分布のベクトル表示である.薄 膜磁石先端部の磁束分布が3次元で求まっているため、任意の平面上の磁束分布をベクト ル表示することが可能である.図34aでは,磁束のベクトル方向が面内から左の方向に傾 くこと,図34cでは逆に磁束のベクトル方向が面内から右の方向に傾くことが再構築され ている.すなわち,図33と同様に磁石から離れるほど,磁束線が磁石の下側の極に向か っていく様子が再構築されている.このように,従来のホログラフィー観察では,電子線 の伝播方向に投影された磁束分布を表示していた(図10a参照)のに対して,図34の各々 の磁束分布は,空間の中の一面のみの磁束分布であり,しかもベクトル量として方位の情 報も再生できているところに大きな特徴がある.



図34 3次元再構築された磁束分布(棒磁石の軸平行面(a,b,c)内分布について)

また,最近,2軸に回転が可能なトモグラフィー用試料ホルダーも開発され,2軸回転 での電子線ホログラフィー/トモグラフィーによる試料内を含めた全記録空間の3次元磁束 分布の観察も実施された[52].その結果,2方向のデータから Maxwell 方程式に基づき残 る1方向のデータを求める手法の課題も明らかとなってきた.応用研究への展開だけでな く新たな装置開発も含めて,重要な情報が得られることが期待される.

5. おわりに

Lorentz 顕微鏡法に代表される透過型電子顕微鏡を用いた磁性観察法は、一般的には古い 技術と考えられている.しかし、小角回折法が再び見直されていることや、本稿で紹介し た様に Foucault 法や電子線ホログラフィーにも新しい観察手法が開発されていること、そ して急速に発展している走査透過型電子顕微鏡に関する技術(特に検出器関連技術)は、 磁性観察法への展開が可能なものが少なくないことなど、透過型電子顕微鏡を用いた磁性 観察法にも新しい展開が芽生え始めているように思われる.一般に新しい技術は、観察対 象や観察手法に新しい世界を拓いてくれる.今後、ローレンツ法にも飛躍的な技術進歩が 期待される

参考文献

- [1] M. E. Hale et al., J. Appl. Phys., **30**, 789 (1959).
- [2] H. W. Fuller and M. E. Hale, J. Appl. Phys., **31**, 1699 (1960).
- [3] J. N. Chapman, J. Phys. D: Appl. Phys., 17, 623 (1984).
- [4] 原田研, *電子顕微鏡*, **35**, 62 (2000).
- [5] T. Ikuta and R. Shimizu, Phys. Stat. Sol., 23, 605 (1974).
- [6] J. N. Chapman et al., *Ultramicroscopy*, **3**, 203 (1978).
- [7] A. Tonomura, "Electron Holography", 2nd ed. (Springer, Heidelberg, Germany 1999).
- [8] J. N. Chapman et al., J. Appl. Phys. 76, 5349 (1994).
- [9] K. Ishizuka and B. Allman, J. Electron Microsc., 54, 191 (2005).
- [10] T. Matsuda et al., Phys. Rev. Lett., 62, 2519 (1989).
- [11] J. Dooly and M. De Graef, *Ultramicroscopy*, **67**, 113 (1997).
- [12] K. Shirota et at., J. Electron Microsc., 25, 303 (1976).
- [13] T. Hirayama et al., Appl. Phys. Lett., 63, 418 (1993).
- [14] Y. Murakami et al., Mater. Sci. Eng., 438-440, 1050 (2006).
- [15] Y. Murakami et al., Nature Nanotech., 5, 37 (2010).
- [16] K. Harada et al., *Nature*, **360**, 51 (1992).
- [17] K. Harada, Microscopy, **62** (**S1**), S03 (2013).
- [18] K. Harada, App. Phys. Lett., 100, 061901 (2012).
- [19] Y. Taniguchi et al., App. Phys. Lett., 101, 093101 (2012).
- [20] Y. Yajima et al., J. Appl. Phys. 73, 5811 (1993).
- [21] Y. Takahashi and Y. Yajima, J. Appl. Phys. 84, 1485 (1998).
- [22] T. Leuthner et al., Proc. XIIth Int. Congr. Electron Microsc., Seattle, 1, 224 (1990).
- [23] R. H. Wade, *Phys. Stat. Sol.*, **19**, 847 (1967).
- [24] M. J. Goringe and J. P. Jakubovics, *Philos. Mag.*, 15, 393 (1967).
- [25] Y. Togawa et al., *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 107202 (2012).
- [26] T. Koyama et al., AIP Advances, 2, 012195 (2012).
- [27] K. Takayanagi et al., J. Electron Microsc., 61, 401 (2012).
- [28] 外村 彰, 日本応用磁気学会誌, 5, 6 (1981).
- [29] A. Tonomura et al., *Phys. Rev.* **B56**, 3397 (1986).
- [30] K. Harada et al., App. Phys. Lett., 84, 3229 (2004).
- [31] A. Tonomura et al., *Phys. Rev. Lett.* 56, 792 (1986).
- [32] 于 秀珍 他, *顕微鏡*, **45**, 273 (2010).
- [33] T. Ikuta, Appl. Opt., 24, 2907 (1985).

- [34] Y. Taniguchi et al., J. Electron Microsc., **31**, 21 (1992).
- [35] T. Kawasaki et al., Ultramicroscopy, 90, 47 (2001).
- [36] J. Miao et al., *Nature*, **400**, 342 (1999).
- [37] O. Kamimura et al., Appl. Phys. Lett., 98, 174103 (2011).
- [38] J. Yamasaki et al., Appl. Phys. Lett., 101, 234105 (2012).
- [39] 谷口佳史,"*薄膜の評価技術ハンドブック*", (テクノシステム 2013).
- [40] T. Kawasaki et al., J. Electron Microsc., 49, 711 (2000).
- [41] 渡辺伝次郎, 電子顕微鏡, 19, 104 (1984).
- [42] J. Hasegawa, Phys. Rev. A62, 7631 (1991).
- [43] K. Harada et al., e-J. Surf. Sci. Nanotech., 6, 29 (2008).
- [44] 原田研, *顕微鏡*, **48**, 169 (2013).
- [45] 矢島裕介, 高橋由夫, 特許"*電子顕微鏡*', 特開平 06-283128.
- [46] Z. Akase et al., *Mater. Trans.*, **48**, 2626 (2007).
- [47] S. Mori et al., J. Electron Microsc., 54 (S1) i65 (2005).
- [48] 森茂生, *電子顕微鏡*, **37**, 56 (2002).
- [49] T. Tanigaki et al., App. Phys. Lett., 101, 043101 (2012).
- [50] T. Tanigaki et al., *Ultramicroscopy*, **137**, 7 (2014).
- [51] 池田正樹 他, 日本顕微鏡学会発表要旨集, 第 68 回学術講演会, 73 (2012).
- [52] 常田るり子他, 顕微鏡, 48, 205 (2013)
- [53] G. Lai et al., Appl. Opt., **33**, 829 (1994).
- [54] G. Lai et al., J. Appl. Phys., 75, 4593 (1994).
- [55] H. Shinada et al., IEEE Transaction on Magnetics, 28, 1017 (1992).

スピン偏極走査電子顕微鏡(スピン SEM)

孝橋 照生

日立製作所 中央研究所

1. はじめに

永久磁石材料の開発において、その磁化分布をミクロに調べ る磁区観察は、貴重な情報を供給できるツールとして期待され ている。本報では高分解能磁区観察装置の一つ、スピン偏極走 査電子顕微鏡(スピン SEM)に関して報告する。この装置は強 磁性体から放出される2次電子が持つスピン偏極度を信号とし て、試料表面の磁化を可視化するものである。この原理に基づ く磁区観察方法の提案が1978年にDiStefanoから成されてい たが¹⁾、1984年に小池らから装置開発成功が報告された²⁾。同 時期に米国などで同じ技術の開発が進められており、実際にその 直後(1985年)、米国 NIST からも開発成功が報告されている³⁾。ま た現在ではドイツ、スイス等の研究機関も保有しており^{4,5)}、世界的 な広がりをみせている。欧米では Scanning Electron Microscopy with Polarization Analysis (SEMPA)と呼ばれることがあるが、基本的 には同じ手法である。

本手法は後述するように他の手法にはない数々の特長を有し、 これまで様々な磁性体試料の観察に幅広く適用されてきた。基 礎物理的な研究のみならず、磁気デバイスの評価・解析にも用 いられている。ここではスピン SEM の最大の特徴である電子ス ピン偏極の検出技術を中心に、装置構成や応用例などを紹介し ていく。

2. 電子のスピン偏極度

スピン SEM で信号としているスピン偏極度は、n 個の電子のス ピン角運動量の平均値として、以下の式で表される。

$$\boldsymbol{P} = \frac{2}{\hbar} \sum_{i=1}^{n} \left\langle \boldsymbol{\varphi}^{(i)} \left| \boldsymbol{s} \right| \boldsymbol{\varphi}^{(i)} \right\rangle \qquad (1)$$

ここで、 $\phi^{(i)}$ は i 番目の電子の波動関数で、 $\langle \phi^{(i)} | \phi^{(i)} \rangle = 1$ 、 *h=h/2* π (*h*はプランク定数)のように表される。スピン角運動 量の *s* と電子の持つ磁気モーメント μ の関係は、

$$\boldsymbol{\mu} = \frac{e}{m} \boldsymbol{s} \tag{2}$$

として表される。ここで、eは電子の素電荷、mは電子の質量 である。素電荷 e が負の数であるため、s と μ は反平行になる。 従って、スピン偏極度 Pと磁化M(単位体積あたりの μ の合計) も反平行の関係になる。

量子力学に従えば、空間内の任意方向について電子のスピンを 測定すると、+ħ/2 もしくは-ħ/2 のいずれかの値が得られる。非磁性 体においては、上記の2つのスピン(以下、上向きスピンと下向きスピ ンと呼ぶ)が同数存在し、全体としてスピンの平均値はゼロになり、磁 化は発生しない。しかし強磁性体である鉄やコバルトはその 3d バン ドにおいて片方の向きのスピンが多くなっており、それがこれらの物 質の磁化の起源となっている。複数の電子について、ある方向のス ピンを測定した時、上向きスピンと下向きスピンの数に偏りがある場 合、その電子集団はスピン偏極しているという。スピン偏極度は定量 的に以下の式で表される。

$$P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} \tag{3}$$

ここで、N↑、N↓はそれぞれ上向き、下向きのスピンを持つ電子の 数である。スピン偏極度はベクトル量であり、全ての空間成分3方向 に関して定義される。

3. スピン偏極度の検出

(1)モット散乱

上述したように、電子のスピン偏極は磁化との対応付けが可能で あり、試料内部から取り出した2次電子のスピン偏極度を測定するこ とにより、試料の磁化情報を得ることができる。スピン SEM と通常の SEM との違いは、簡単に言えば信号を供給する検出器の違いと言 える。つまり、通常のSEMが搭載する検出器は2次電子の数を検出 するものであるが、スピン SEM においては2次電子のスピン偏極度 の検出が必要となる。電子線のスピン偏極度を測定できる様々なス ピン検出器が報告されているが、現在スピン SEM に用いられている スピン検出器は、モット検出器^{6,7)}をはじめ、いずれも重原子ターゲ ットと 2 次電子スピンとのスピン軌道相互作用を利用したものであ る。

そのようなスピン検出器の詳しい解説はここでは省略するが、スピン偏極度検出の大まかな原理は以下の通りである。まず、電子がターゲットである重原子に弾性散乱される過程を考える。この散乱過程においては、電子の電荷に由来する電気的な力が殆ど支配している。しかし、散乱される電子がターゲット重原子の原子核ごく近傍を通過する際に生じるスピン軌道相互作用は、電子の持つスピンの向きに依存する。従って、ターゲットに入射する電子の軌道、エネルギーが全く同じであっても、スピンの向きが違っていれば、散乱方向に違いが生じる。これをモット散乱とよび、重原子に入射した電子の散乱方向の非対称性を利用して、そのスピン偏極度を測定することができる。ターゲットに金などの重原子を用いることが多いのは、スピン軌道相互作用を大きくするためである。この散乱方向とスピン偏極度の関係に関する詳細な解説は他の文献⁸⁾を参照して頂きたい。

上述したモット散乱の原理図を図1に示す。上向きスピンと下向き スピンを持つ電子が重原子ターゲットに衝突し、後方散乱された電 子数をA、B二つの電子検出器でカウントする。後述するが、効率の 関係で後方散乱電子を検出する方が、スピン偏極度の検出には有 利である。この場合、スピン偏極度は

$$P = \frac{1}{S_{eff}} \cdot \frac{(N_A - N_B)}{(N_A + N_B)} \tag{4}$$

として計算される。ここで N_A、 N_BはそれぞれA、Bの電子検出器に入 射する電子数で、S_{eff}は実効的シャーマン関数と呼ばれモット散乱の 条件によって決まる定数である。ここで注目したいのは、スピン偏極 度の導出にあたり、(4)式より2つの電子検出器でカウントされた電子 数の比が重要であり、その絶対値には依存しない、つまり入射する 電子数の絶対量に拠らないことである。そのため、例えばスピン SEMにおいて表面の凹凸の影響のために2次電子数が変化しても、 スピン偏極度は独立に抽出することができる。このため表面形状の 影響を受けずに磁化情報を得ることができ、他の手法と比較したス ピン SEM の特長の一つの起源となっている。

モット検出器の場合、スピン検出器に入射する電子の加速度 は数+ kV 程度なので、殆どの電子はターゲットを透過してし まい、衝突する電子の 1%以下しか電子検出器に入ってこない。 従って、統計ゆらぎによる検出誤差が、測定に大きな影響を及 ぼす。もし、 $N = N_A + N_B$ のゆらぎに拠る P_x の誤差を δP_x と定 義すると、それは以下の式で表される。

$$\delta P_x = 1 / \sqrt{S_{eff}^2 \eta N_0} \tag{5}$$

ここで η は *N*/*N*₀、*N*₀は重原子ターゲットに入射した電子数 である。もし、*N*₀が一定であれば、*S*_{eff} $^{2}\eta$ が大きいほど、測定 誤差である δP_x は小さくなる。従って、モット検出器の効率は、 通常以下の式で示される。

$$F \equiv S_{eff}^{2} \eta \tag{6}$$

後方散乱される電子の方が η は少ないものの S_{eff} が大きく、 結果として F が大きくなることから、図1において θ が 120° 近辺の電子を中心に捕獲できるように電子検出器を配置する場 合が多い。結果としてスピン SEM で使われているモット検出器 の効率は、大体 10⁻⁴~10⁻⁵の大きさであり、通常の SEM で用いら れている電子検出器と比較すると 3 桁以上、効率は低い。

したがって、スピン SEM で磁区像を取得するに当たり、十分 な像質を確保できるスピン偏極度を検出するには、測定する電 子数を増やすための様々な方策が必要となる。例えば通常の SEM よりも多くの1次電子線電流、長い画像取得時間が必要で ある。さらには試料からの2次電子をできるだけ多くスピン検 出器へ送りこむために2次電子の収集光学系を試料間近に設置 することも重要である。これらの制約は、測定中の1次電子線 の細束化を困難にする方向に働き、分解能の向上に関して支障 となる。従ってスピン SEM の分解能は通常の SEM のレベルには 至っていない。

このスピン検出効率向上のために、最適なモット散乱条件を 探索する様々な試みが報告されている。例えばモット散乱の条 件と、 S_{eff} 、 η やFの関係に関して、モンテカルロシミュレーシ ョンによる検討⁹⁾が報告されている一方、実際に系統的に散乱 条件を変化させて各パラメータを調べた実験¹⁰⁾も行われてい る。これらの報告では、被測定電子がターゲットに衝突する際 のエネルギーを低くするほど、また金薄膜が厚いほど、 η が大 きく、 S_{eff} が小さくなる傾向が確認されている。

前述のように、スピン偏極度の一成分を調べるためには、タ ーゲットより散乱された電子数の散乱方向の非対称性を2つの 電子検出器で調べればよい。図1ではAとBの2つの電子検出 器を用いてX方向のスピン偏極度を検出している。スピン検出 器として用いられているモット検出器の概略構造は、図2のよ うにターゲットである金薄膜の周辺に4つの電子検出器を配 置している場合が多い。そして対向する2つの電子検出器が捕 獲する電子数の比を調べることにより、電子の金薄膜に衝突す る電子線軌道に垂直なスピン偏極度の2成分を求めることがで きる。つまり図2においてはスピン偏極度成分 P_x、P_vは、

$$P_{x} = \frac{1}{S_{eff}} \cdot \frac{N_{A} - N_{B}}{N_{A} + N_{B}}$$
(7)

$$P_{y} = \frac{1}{S_{eff}} \cdot \frac{N_{C} - N_{D}}{N_{C} + N_{D}}$$
(8)

のように求められる。

よく知られているモット検出器は、効率を上げるため、ターゲットに 衝突する時点で、電子を数+kVから100kV程度まで加速させてい る。そのためターゲットの直前に加速管を配置し、またターゲットや 電子検出器、或いは信号を取り出す部分を耐圧容器で覆う必要が あり、かなり大掛かりな装置になる。その一方、後述するように1kV 以下の低い加速電圧で動作する小型の検出器(散漫散乱検出器 やLEED検出器)を開発している研究グループもある^{11,12}。

(2)磁化3成分の検出

このように、モット検出器を用いると、入射電子線の軌道に垂直な 2つのスピン偏極度成分を検出することができるが、もう一つの成分 (図2で入射電子線に平行なz成分)は検出できない。そこで全3成 分を検出するためには何らかの工夫が必要となる。

その方法の一つは、スピン検出器を2つ用いることである。 この方式の概略を図3に示す。試料からスピン検出器への2次 電子搬送経路の途中に静電偏向器を設置し、それを ON/OFF す ることにより電子を 90 度偏向あるいは直進させ、2つのスピ ン検出器のどちらかを選択して電子を入射させる。静電偏向器 による軌道の偏向はスピンの方向を変えないため、片側のスピ ン検出器がスピン偏極度の試料面内の2成分(xy成分)を、他 方が試料面内の1成分(y成分)と垂直成分(z成分)を検出 する。従って静電偏向器を ON/OFF させて 2 回の測定すること により、スピン偏極度の3成分全てが検出できる(v成分に関 しては2回測定することになる)。米国NISTのグループが、数 百 eV で動作する散漫散乱検出器¹¹⁾を2つ用いることにより、 この方式で全磁化3成分の検出に成功している¹³⁾。この方式は 小型のスピン検出器では差し支えないが、モット検出器のよう な高電圧で稼動する大型のスピン検出器の場合は、2つ搭載す ると装置全体が大型化する問題が生じるので注意が必要であ る。

一方、スピン検出器に電子が入射する前段に、スピン回転器 を設置し、検出不可能なスピン偏極度成分を 90 度回転し検出 可能方向に回転させた後にスピン検出器に入射させる方法が ある^{14,15)}。概略を図4に示すが、本来検出不可能方向である *2* 方向のスピン偏極度成分を、スピン回転器内で 90 度回転し、 *x*方向に向ければ検出可能となる。この場合、スピン検出器は スピン回転器が 0FF の時にスピン偏極度の *xy*成分、0N の時に *yz*成分を検出するので、その2回の測定で合わせてスピン偏極 度全3成分が検出できる。このようなスピン回転器は電子軌道 を変えずにスピン偏極度を 90 度回転する必要があるが、エネ ルギー分析器として知られているウィーンフィルター¹⁶⁾がその 機能を持つ。図4で示しているスピン回転器もこのタイプのも のである。スピン回転器内部には電子軌道とお互いが直交する 電場と磁場が印加されており、通過する電子は電場からは静電 気力、磁場からはローレンツ力を受ける。この電磁場の大きさ

を調整して、静電気力とローレンツ力がキャンセルする(ウィ ーン条件)ようにしてやれば、電子は直進を続ける。一方、電 子スピンは印加された磁場方向を回転軸としてラーモア歳差 運動をする。このラーモア歳差運動の回転角は印加磁場の大き さやスピン回転器内に電子が滞在する時間に依存するので、電 磁場の大きさや入射電子のエネルギー、スピン回転器のサイズ などを調節してデザインすれば、目的の仕様を満たすスピン回 転器を作ることができる。ただし実際にはスピン回転器自身に レンズ作用を持たせる必要があり、一様な電磁場の組み合わせ では問題がある。この問題は電磁場のどちらかあるいは両方に 曲率を持たせることで解決できる^{17、18)}。またウィーン条件はス ピン回転器内部のみならず、出入り口の電磁場が大きく変化す る部分でも保つ必要がある。図4では省略しているが、スピン SEM に搭載しているスピン回転器はこのような点に留意して、 電極あるいは磁極表面を曲面で構成したり、出入り口近辺で急 激に変化する電磁場を調節するための機構を付けたりしてい る 14、15)。

4. スピン検出器

以下にスピン SEM に用いられているいくつかのスピン検出器 を紹介する。

(1) モットタイプの検出器

a)モット検出器^{6、7)}

モット検出器は前述したようにスピン検出器の中でも歴史が 古く広く用いられている代表的なスピン検出器である。ターゲ ットである金やトリウム等重原子の薄膜あるいはバルク表面 に被測定電子を衝突させ、散乱方向の非対称性よりスピン偏極 度を検出する。衝突させる電子の加速電圧が数+kV~100kV 程 度と高いため、後述する低加速で電子を衝突させる方式と比べ るとターゲット表面の状態に鈍感であり、超高真空中でなくて も安定した動作ができる。反面、装置が大型になる欠点がある。 そのスピン検出効率の向上のためには様々な工夫が試みられ ている。例えば後方散乱した電子を損失なく検出するため、電 子検出器の取り込み立体角が大きくなるような配置にするこ とは効果的である¹⁹⁾。その一方、例えば半導体検出器では電子 のエネルギーが低くなるとパルス波形を持つ検出信号の波高 が低くなり雑音との分別に支障が発生し、またカウント数が多 すぎると検出信号が重なり合って数え落しが増えるといった 問題も生じる。したがって、Mott 検出器の効率向上には、Mott 散乱の特性と測定環境を総合的に考えて検討することが必要 である。

b)小型モット検出器^{20、21)}

Dunning²⁰⁾、柿崎²¹⁾らのグループから報告されているもので、 前述した従来からのモット検出器が持つ"高電圧駆動で装置が 大型"という欠点を改善したものである。ターゲットに衝突す る際の電子のエネルギーを 20kV 程度まで低くしている。従来 タイプと比較し、*S_{eff}*が小さく_nが大きくなり結果として同程 度の検出効率 Fを達成している。またこのタイプにおいては検 出電子のエネルギーが低いこともあり、半導体検出器ではなく マイクロチャンネルプレートがよく用いられている。またター ゲットで散乱した電子は一度減速されてから電子検出器に取 り込まれるリターディング形式をとっているものが多く、散乱 電子の軌道を制御するレンズ系のデザインが必要である。

(2) 散漫散乱検出器¹¹⁾

モット検出器と同じくターゲットである金薄膜で散乱した電 子を検出するが、入射電子の加速電圧は 150V 程度と低い。こ のため、従来のモット検出器は入射電子軌道方向に 50cm 以上 のサイズであるのに対し、10cm 程度のコンパクトな設計を実現 している。*S_{eff}*の値は小さいが散乱された電子を取り込む立体 角が大きく、(6)式でηが大きくなるので検出効率 *F* はモット 検出器と同程度である。ただし散乱する際の電子エネルギーが 低いため、金薄膜に衝突させるまでの電子光学系は注意深く設 計しなくてはいけない。また金薄膜表面が汚れるとその影響で 検出効率が劣化する。そのため、金薄膜を超高真空中に保持す る必要があり、その場合でも定期的な清浄化が必要である。

(3) LEED(low-energy-electron-diffraction)型検出器¹²⁾

ドイツの MaxPlanck 研究所で開発された、低速電子線回折を 利用しているスピン検出器も、前述の散漫散乱検出器と同じく、 低電圧稼動、小型のスピン検出器として知られている。100eV 程度の被測定電子線をタングステン単結晶表面に照射し、電子 の回折スポット強度を周辺に配置した電子検出器で調べるこ とにより照射電子のスピン偏極度を測定する。この方式の場合、 単結晶表面での回折のために *S*_{eff}が大きくなり、ηが小さいも ののモット検出器と同程度の検出効率 *F*を有する。また単結晶 表面での低速回折を利用することから、散漫散乱検出器同様、 やはりターゲットの清浄表面は必須であり、超高真空中に設置 していたとしても定期的にフラッシュ加熱クリーニングを行 う必要がある。

5.2 次電子のスピン検出

これまで述べてきた電子のスピン偏極は、強磁性体試料内部の 電子を、外部から電子線やイオンビームを照射して 2 次電子として 取り出した場合にも保たれることが、実験的に確認されている²²⁻²⁴⁾。 強磁性体からの 2 次電子が、その放出点の磁化と反平行なスピ ン偏極度を持つという事実は、Chrobok らによって 1976 年に 報告された²²⁾。しかしながら、 2 次電子の脱出過程は複雑で、 2 次電子のスピン偏極度とエネルギー、また 1 次電子線エネル ギーとの関係を説明することは難しい。基本的には、 2 次電子 量は、そのエネルギーとともに指数関数的に減少する。 2 次電 子のスピン偏極度も、そのエネルギーとともに減少するが、 20eV 以上ではほぼ一定になる。この傾向はスピン SEM 測定に とっては都合がよく、つまり 2 次電子の量が多い低エネルギー

(数 eV)範囲においてスピン偏極度が高いため、エネルギーの 低い 2 次電子を収集、解析すれば効率の良いスピン偏極度測定 が可能になる。スピン偏極度の効率が低いために、S/N を如何 に高くできるかがスピン SEM 測定にとって極めて重要なポイ ントである。

また、2次電子のスピン偏極度が持つ情報深さも、スピン SEM データの解析には重要である。この情報深さを実験的に 求める方法として、非磁性体基板の上に磁性薄膜を厚さを変化 させて作製し、その薄膜からの2次電子スピン偏極度を解析す る手法がある。Mori らは FeO 基板の上に鉄薄膜を作製し、そ のスピン偏極度を解析した結果、情報深さの値として 0.63nm を導き出している²⁵⁾。Ni 薄膜に関しても同様の値を出してい る実験も報告されており²⁶⁾、スピン SEM の情報深さは遷移金 属試料に関しては 1nm 以下であることがわかる。このような 浅い情報深さは、極薄膜の磁性測定には極めて有利である反面、 酸化などによる試料表面の変質には充分注意が必要で、どうし ても超高真空チャンバ内での測定が必要になってくる。

6. スピン SEM の構造

(1)測定の基本体系

スピン SEM の磁区像取得における基本体系を図 5 に示す。細く 絞った1 次電子線を試料に照射し、放出される2 次電子のスピン偏 極度をスピン検出器で検出することにより、2 次電子放出点の磁化 の向きが判る。そして1 次電子線で試料表面を順次走査することに より、この視野における磁区像を得る。この際、磁化の2 成分、或い は3 成分を取得でき、各成分ごとの磁区像と形状像を同時に得るこ とができる。

他の磁区観察法と比べたスピン SEM の特長として、1)分解能が 高い(2013 年現在最高で 3nm²⁷⁾)、2)厚さ、表面の平坦さ等、試料 形状に対する制約が緩い、3)表面形状に影響されず磁化情報を得 ることができる、4)3 次元的に磁化方向の検出が可能、5)表面敏感 な測定(試料表面から 1nm までの短い情報深さ)、等が挙げられる。 このうち、1)と2)はSEM方式なので得られる特長であるが、一般の SEMと比べると分解能は悪い。これは前述したスピン検出系の感 度の問題のためである。3)も前述したスピン(極極度の求め方、並び にスピン検出器の構造を考えると理解できる。2)と3)のため、表面 に凹凸構造を持つ磁気デバイスの観察にも適用されている。4)の 磁化方向の検出に関しては前述どおり、基本的には同時に 3 つの 磁化方向別の磁区像を撮ることが可能である。5)は最表面の磁化 情報を得られる特長でもある反面、磁気デバイス試料等において表 面を覆っている保護膜や潤滑膜等はもちろん、大気中から持ち込 む試料の場合は表面の酸化層が問題となる。そのため、アルゴンイ オンミリング等、清浄な観察表面を作製する機能が必要であり、観 察チャンバも超高真空仕様でなくてはいけない。

(2)装置構成

a)チャンバ構成

スピンSEMのチャンバ構成の一例を図6に示す。この場合は全体 が3つのチャンバとロードロックから構成されている。高分解能観察 をするため、これらの構成は除震台の上に搭載されている。外部か ら運び込まれた試料はまずロードロックに挿入される。この部分は試 料挿入後、ターボ分子ポンプで10⁻⁵Pa台の真空度まで排気される。 その後、試料はトランスファーロッドで準備室に運ばれる。準備室は ターボ分子ポンプやイオンポンプによって10⁻⁷Pa以下に真空排気さ れている。ここには試料表面清浄化のためのアルゴンイオンミリング の設備や、試料最表面に磁性層が剥き出しになったことを確認する オージェ分析装置を備えている。ここで表面清浄化が行われた後、 試料は観察室に運ばれる。このように作り出した清浄表面が測定中 に汚れないように、観察室は 10⁻⁷Pa から 10⁻⁸Pa の超高真空状態に 保つ必要があり、やはりターボ分子ポンプやイオンポンプによって 排気されている。またここには図 5 に示したスピン SEM の根幹部が 装備されている。つまり1次電子線を照射する電子銃、試料ステー ジ、試料から放出された2次電子を収集・搬送する電子光学系が搭 載されている。そして 2 次電子搬送電子光学系により、収集された 電子はスピン検出室に運ばれる。ここにはスピン検出器や、視野探 しのためのSEM像用の2次電子検出器が搭載されている。真空度 は、観察室に悪影響を及ぼさない程度でよく、10-6Pa 台で稼動して いる。スピン検出器に搭載されている各電子検出器からの信号は信 号処理システムに送られる。ここでは式(7)や(8)に従って 2 次電子 放出点のスピン偏極度が計算されるが、それを電子銃の走査を制 御する信号に従ってマッピングすることにより磁区像が描き出され る。

(b)電子銃

スピンSEMの特長の一つはその空間分解能にある。それはノイ ズや振動の影響がないとすると、1次電子線径と2次電子の試料内 部での広がりできまる。後者の影響は大体1nm程度であり、従って1 次電子線径を細くすることが高分解能化への課題であり、1 次電子 線はスピン SEM において極めて重要な部分である。

1次電子線径を小さくするためには、エネルギーの揃った電子を 放出でき、放出点サイズの小さな電子線源が有利である。その一方、 スピン検出器の効率の低さを補うために1次電子線量は極力大きく し、数多くの2次電子を分析する必要がある。典型的な報告例とし ては1nA程度のものがある^{19,28)}。また、スピン SEMの像取得時間は 数分から数十分と長いので、長時間安定した1次電子線が必要で ある。スピン SEM では熱電子放出型(thermal emission)や電界放出 型(field emission)の電子源も使われているが、上述の条件を踏まえ ると、ショットキーエミッションタイプ²⁹⁾の電子銃が高分解能測定に有 利と考えられ、これを用いたスピン SEM が 5nm 以下の高分解能を達 成している^{27,28)}。

(c) 2 次電子収集·搬送系

前述のようにスピン SEM 測定において S/N を向上させるには、可 能な限り多くの 2 次電子をスピン検出器に導き、スピン検出器の効 率の低さを補う必要がある。そのため、2 次電子の収集・搬送系は極 めて重要である。

2 次電子の収集率を上げる一つの指針は、2 次電子収集電極を 試料に近づけて配置することである。この場合、対物レンズと2 次電 子収集電極が干渉しないように、対物レンズ下端と試料間距離で定 義される Working Distance (WD)を大きくとる必要がある。しかしこの WD を大きくすると 収差の影響で1 次電子線が絞りにくくなり、結果 として分解能の劣化を招く。このためWDは、分解能と2次電子収集 率の妥協点で決められることになる。

また、2次電子をスピン検出器まで損失なく搬送するためには、2 次電子束の軌道や形状を調整するため、いくつかの電子レンズ、静 電偏向器などを搭載する必要がある。またスピン回転器もその一部 として組み込まなくてはいけない。これらの電子光学系の設計には、 電子軌道シミュレーション³⁰⁾を用いて行われることが多い。

2 次電子光学系設計は、この装置の開発の成否がかかっている 箇所であると言っても過言ではない。UHV チャンバの中に数百~数 千Vの電位がかかっている電子レンズを位置精度よく組み合わなく てはならず、組み立てと立ち上げ、並びに故障した際の修理の労力

(d) 信号処理システム

スピン検出器からの信号は、信号処理システムに入力され、磁区 像が作られる。このシステムは、大きくデータ収集部とデータ表示部 に分けることができるが、一連の操作は全てパーソナルコンピュータ で行えるようにしている。

データ収集部では、スピン検出器からの信号を取り込む。この信 号は、図2で示すようなスピン検出器の場合は4チャンネルである。 スピン SEM では磁区像以外に、試料表面形状像も取得できるが、こ れは4つの電子検出器からの信号の合計より2次電子強度を求め て形状像を得る場合と、試料における1次電子線の吸収電流をモ ニターして試料表面の凹凸情報を得る場合がある。

これらの入力信号は、1次電子線を走査する走査制御装置からの 信号と併せて、データ表示部に送られる。また前述の磁化3成分検 出の場合は、スピン回転器やスピン検出器を選択する静電偏向器 の ON/OFF も、走査制御装置からの信号で制御することになる。

データ表示部では、イメージプロセッサーにより、スピン検出器か ら送られてくる4チャンネルの信号から式(7)(8)を用いて二つ(或い は三つ)のスピン偏極度成分が計算される。この計算結果はフレー ムメモリーに送られ、1 次電子線を走査する信号と併せて磁区像を 作成し、表示/保存される。これら表示を1 次電子線走査中でも順 次行えるように、1 ピクセルの画像取得時間程度(参考文献 28 に紹 介されているものでは最短 50usec)の高速で、演算と表示を行える ようにしている。

7. 観察前の試料準備

スピン SEM は、他の磁区観察方法と比べると試料形状に関する 制約は緩い。あくまで SEM であるので、導電性は必要であるが、試 料形状はサンプルホルダーに取り付けられるサイズであれば問題な い。典型的なものは厚さ1mm程度で5-10mmサイズの平板であるが、 試料ホルダーを工夫すれば様々な試料形状に対応できる。また通 常の SEM 同様、倍率の変更も広範囲で可能である。例えば1mm 角 から、300nm 角の視野まで、任意の視野を選ぶことができるので、広 い視野から特定の観察ポイントを探した後、高倍で観察する際など には便利である。

但し、前述したように、スピンSEMにおける磁化情報は、試料表 面 1nm レベルの深さから出てくる 2 次電子により作られる。従って、 磁性体試料表面が清浄でないと、磁化情報が得られず磁区像が取 得できない。そのため、試料の表面状態には注意が必要である。磁 気デバイス試料においては、保護膜や潤滑剤が磁性体表面を覆っ ている場合があるが、極力そういったものはスピン SEM のチャンバ に入れる前に除去しておく方が有利である。その方法としては、ア ルゴンイオンミリングや、カーボンなどの有機物の除去であれば酸 素アッシャー等が考えられる。このように大まかに非磁性膜を除去し ておき、その後試料をスピン SEM チャンバに挿入し、試料準備室で 仕上げの表面清浄化を行うが、この場合もアルゴンイオンミリングが 主流である。アルゴンイオンの加速電圧は高い方が短時間で清浄 化ができるが、エネルギーが高すぎるとアルゴンイオンの試料内部 への侵入や試料表面原子配列の破壊により、表面状態が変化して しまう可能性があるので注意が必要である。この点を踏まえて、準備 室のアルゴンイオンミリングは、低加速で大電流量が望ましい。

またその他の観察試料形態としては、真空チャンバ内で、蒸着や スパッタ等、磁性薄膜を作製して、その場観察する方法もある³¹⁾。ま た、外部から持ち込んだバルク試料を真空チャンバ内で劈開するこ とにより、清浄な表面を出す方法も報告されている³²⁾。

8. 測定例

スピン SEM はこれまで様々な磁性体試料を観察してきたが、本節 では2つの磁区変化を観察した実験を紹介する。一つは試料加熱 機構を用いて Co 単結晶を 500℃までの高温下で観察したもの³³⁾、 他方はサブミクロン結晶異方性 NdFeB 磁石において、熱消磁状 態、並びに残留磁化状態を観察したもの³⁴⁾である。

(1) Co 単結晶

Co単結晶(0001)面の高温磁区観察を試みた。室温から 500℃ まで、100℃刻みで撮影した結果を図7に示す。この試料は、試 料面垂直方向((0001)軸方向)に磁化が向きやすい容易軸を持っ ているが、試料表面においては静磁エネルギーのために殆ど面 内方向に磁化は傾き、還流磁区的な構造をとることが知られて いる。実際に、試料面垂直成分は小さいことを確認したので、 図7では試料面内成分(XY成分)のみ示している。室温にお いては、結晶構造の対称性を反映した 2-3um サイズの磁区構造 が見られている。温度を上げていくと、200℃までは比較的磁区 形状の変化は小さいが、200℃から 300℃で細かな磁区が一斉に 消失し、10um 以上の大きな磁区構造をとるようになる。その 後 400℃から 500℃で、大きな磁区の中に 2-3um の小さな磁区 が生じている状態が見られる。Co 単結晶は、室温では(0001)軸 方向であった磁化容易軸が、200℃近辺の相転移点より高温では

(0001) 面内方向に変化することが知られている³⁵⁾。つまり相 転移点以下では、試料内部では磁化は(0001)軸方向にむいてい るものの、静磁エネルギーのために試料表面では細かい還流磁 区的な構造をとっている。しかし相転移点以上では(0001)面内 方向、すなわち試料面内方向が容易軸となり、試料内部でも表 面でも試料面内方向を向いた大きな安定した磁区になる。その 相転移が今回の実験において 200-300℃の間で見られた大きな 磁区変化の原因と思われる。また、Co 単結晶は 450℃近辺で hcp 構造から fcc 構造に転移することが知られており 36)、2つ めの相転移はその影響と思われる。

このように、Co(0001)面の磁区を観察することにより、過去 に報告されている相変化に対応する磁区の変化を観察すること ができた。この加熱機構は、今後も高温での磁気特性が注目さ れる磁気デバイス観察に適用していく予定である。例えば、ハ イブリッドカーに搭載するモーター材である強力磁石 NdFeB 焼 結体は高温での更なる保磁力(磁化を保つ力)の増強が求めら れており、高温での磁区変化の評価が求められている。このよ うな観察項目も、ここで紹介した加熱機構を用いることにより、 今後のスピン SEM の評価課題になり得る。

(2)サブミクロン NdFeB 微結晶磁石

次に、サブミクロン結晶異方性NdFeB磁石の観察例を紹介す る。前述のようにNdFeB焼結体磁石は車載用のモーターに使われ ている永久磁石材料として、ハイブリッド車や電気自動車の普 及に伴い注目を集めているが、サブミクロン結晶異方性NdFeB 磁石においても、保磁力等の性能向上を目指した研究が盛んに 行われている。今回我々はこの試料の磁化過程を可視化するこ とを目的に、熱消磁状態並びに残留磁化状態の磁区観察を試みた³⁴⁾。

まず磁化がゼロである熱消磁状態におけるスピンSEM像(磁 区像と表面形状像)を取得した。次いで試料を一旦取り出し、 別装置である磁磁場印加装置により試料に対して80kA/mの磁場 を印加した後、磁場をゼロに戻して残留磁化状態をつくり、再 びスピンSEM装置に戻してスピンSEM像を取得した。その印加磁 場を順次80kA/mずつ増加させ、磁化が完全に一方向に向くまで この操作を繰り返し、変化していく残留磁化状態の磁区を評価 した。

観察例を図8に示す³⁴⁾。配向方向は写真の縦方向であるが、 ここでは大きな磁化を持つ配向方向成分像のみ示している。熱 消磁状態での磁区像において、それとは少し傾いた方向に現れ ている白黒の帯状構造が磁区である。白い領域が上向き、黒い 領域が下向きの磁化を示し、異物など磁化を持たないものはグ レーで表示される。この視野においては白黒の面積はほぼ同じ 位になっている。形状像においては、写真左側に縦方向にクラ ックが走っており、また右側には大きさ1um弱の異物が観察され ている。それ以外の領域では0.3-0.5um程度の大きさの構造が、 薄いコントラストで表されているが、これがこの試料を構成す る結晶粒である。前述のArイオンミリングにより、粒界部が粒 内部よりもミリングされやすいため若干窪み、形状像にコント ラストがついている。そのコントラストに基づいて一つの結晶 粒の位置を白線で示しているが、各磁区像にも同じ結晶粒の位 置を、写真間で比較する上でのマーカーとして示している。

熱消磁状態全体の特徴としては、形状像と磁壁(磁区境界部) 位置の関係を比較すると、結晶粒界部と磁壁位置は一致してい る部分もあるがそうではない箇所もある。磁壁はその面積を小 さくすることを優先して直線的に走っているので、結晶粒内を 通る場合もあり、その場合は一つの結晶粒内に複数の磁区が存 在する多磁区粒子を作っていることになる。磁区形状に関して は、熱消磁状態から240kA/mまでは大きな変化はないが、それ以 降は徐々に黒い部分が細くなり、白い領域が増えていることが 判る。320kA/mの残留磁化状態ではそれまで存在していた大きな 黒い磁区が小さく分裂する傾向が見られ始め、400-560kA/mにお いて急速に黒い磁区は小さくなり、そして消滅している様子が 見られる。またその過程において、熱消磁状態では直線的で滑

らかであった磁壁に、320kA/m以上ではかなり複雑な凹凸がつい ている様子が判る。その凹凸構造の大きさは0.3-0.5um程度と結 晶粒径レベルであり、磁壁が結晶粒界部に存在することを示唆 している。ここで、各磁区像に位置のマーカーとして記してい る結晶粒に着目して磁区変化を解析してみる。この結晶粒は熱 消磁状態から240kA/mの残留磁化状態において、大きな黒い磁区 の一部であった。320kA/mで周辺の磁化が反転したが、この結晶 粒は元の磁化方向を維持したので、その結晶粒界部の大半が黒 い磁区の境界部となり、凹凸構造を持つ磁区境界部を形作るこ とになった。400kA/mでは更に周辺磁区の反転が進み、480kA/m においては完全な孤立した磁区になっている。そして560kA/m ではこの結晶粒の磁化も反転している。この視野の他の部分を 調べても、印加磁場の大きい残留磁化状態においては、結晶粒 の磁化の維持また反転は、単磁区となった結晶粒単位で行われ ていることが確認できた。このような磁化過程を調べることに より、本磁石の特性改善、特に保磁力向上に寄与するデータ創 出へ繋げていくことが期待される。

9. 今後の展開

前述のように、スピン SEM に関して様々な観察例、装置開発の報告がなされている。しかしこの技術はまだ未熟な部分が多く、特に通常の SEM の検出器と比べて感度の悪いスピン検出器の改良は必須である。スピン SEM 以外に、電子のスピン偏極度を検出する技術としてはスピン分解光電子分光が有名であるが、その分野では鉄の単結晶表面を用いる革新的に効率のよいスピン検出器³⁷⁾が開発されている。スピン分解光電子分光における電子スピン検出は、2次電子よりもエネルギー分散の小さい電子線を扱っており、スピンSEM とは測定条件が異なる。しかしその技術を参考にした検出器の効率向上を検討し、一般の SEM 並みの分解能やスループットを目指さなくてはいけない。

その一方、温度、磁場等、試料環境を変化させながらの"その場 磁区観察"も、今後ますますニーズが増えると予想される。特に磁気 デバイスの場合は、使用環境における磁性解析がその性能向上に は必要であり、その面では高温、高磁場中、高圧力下など、様々な 環境下での磁区観察が必要になってくる。スピン SEM は超高真空 中での観察が必須であり、試料周辺に組み込む部品にも真空度を 考慮した制限がかかる。また電子線の軌道やスピンは磁場との相互 作用が大きく、例えば磁場印加機構などを組み込んだ場合は 2 次 電子軌道やスピンの向きが乱される懸念がある。このようにスピン SEM の試料環境を変化させるのは容易ではないが、様々な工夫を 凝らして 1kOe までの磁場印加³⁸⁾や、本報でも紹介した 500℃まで の試料加熱³³⁾を成し遂げた報告がされている。

スピンSEM開発の最初の報告から30年が経つ。日米欧の研究機 関が保有しているとはいえ、まだ限られたグループのみが開発に成 功して使用しており、その研究者人口は少ない。しかしその分、大き な可能性を持った技術であり、上記のような改造・改善を加えること により、更なる飛躍を遂げる可能性は充分ある。永久磁石などの磁 気デバイスの発展とともに、この技術を進化させていきたい。



図1 モット散乱の模式図。ターゲットの原子核とのスピン・軌道相互作用により、 上向きと下向きをもった電子では散乱断面積が異なる。その結果、上図で電 子検出器Aは下向きのスピンを多く、電子検出器Bは上向きのスピンを多く検 出する。従って、入射電子線がx方向にスピン偏極していた場合(上向きと下 向きをもった電子数が偏っていた場合)、2つの電子検出器ではカウント数に 違いが生じる。ターゲットである重い原子核をもった原子としては、金が多く用 いられている。



図2 モット検出器の基本構造。



図3 2つのスピン検出器を搭載することによる磁化3成分観察¹³⁾。



図4 スピン回転器の原理図^{14,15)}。電子軌道とお互いが直交する電場と磁場 を印加し、ローレンツカと静電気力をキャンセルさせるウィーンフィルタをベー スにデザインしている。実際にスピン SEM に搭載しているスピン回転器は、電 極あるいは磁極に曲率を持たせ、出入り口近辺で急激に変化する電磁場を調 節するための機構が付いているが、本図では省略している。



図5 スピン SEM の磁区像取得における基本体系



図6 スピン SEM のチャンバ構成の一例。



10 um

図7 Co(0001)の高温での磁区変化。200℃から300℃、400℃ から500℃への変化において、磁区構造に大きな変化が見られ るが、これはそれぞれ該当温度で発生する磁気異方性の変化、 結晶構造の変化に対応していると考えられる(参考文献33よ り転載)。



図8 スピンSEMで撮影した熱消磁状態並びに残留磁化状態における磁区 像と、形状像。残留磁化状態磁区像の下に記した磁場の値は、残留磁化 状態作製プロセスの際に印加した値を示す。写真縦方向が配向方向であ る。写真左下端に、高磁場でも反転しない小さな磁区が観察されている が、それに対応する結晶粒を形状像で確認できる(白線で位置を示す) (参考文献34より転載)。

Reference

1) DiStefano TH (1978) Technology for Detecting Small Magnetic Domains and Beam-Addressed Memory Therewith. IBM Tech. Disc. Bull. 20(10): 4212-4215.

2) K. Koike and K. Hayakawa: Jpn. J. Appl. Phys. 23, L187 (1984).

3) J. Unguris, G. G. Hembree, R. J. Celotta, and D. T. Pierce: J. Microsc. **139**, RP1 (1985).

4) H. P. Oepen and J. Kirschner: Scanning Microscopy 5, 1 (1991).

5) R. Allenspach: J. Magn. Magn. Mater. 129, 160 (1994).

6) N. F. Mott: Proc. R. Soc. London Ser. A, 124, 425 (1929).

7) C. G. Shull, C. T. Chase, and F. E. Myers: Phys. Rev. 63, 29 (1943).

8) J. Kessler: Polarized Electrons 2nd Edition, Springer Series on Atoms and Plasmas 1, p.20-83 (Springer-Verlag, Berlin, 1975).

9) G. Weber, R. Märtin, A. Surzhykov, M. Yasuda, V.A. Yerokhin, and Th. Stöhlker: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 279, 155(2012).

10) T. Kohashi, M. Konoto, and K. Koike: Jpn. J. Appl. Phys. **45**, 6468 (2006).

11) J. Unguris, D. T. Pierce, and R. J. Celotta: Rev.Sci.Instrum. **57**, 1314 (1986).

12) J. Kirschner and R. Feder: Phys.Rev.Lett. 42 1008 (1979).

13) G. G. Hembree, J. Unguris, R. J. Celotta, and D. T. Pierce: Scanning Microsc. Intern. Suppl. **1** 229 (1987).

14) T. Kohashi, H. Matsuyama, and K. Koike: Rev.Sci.Instrum. **66**, 5537 (1995).

15) T. Kohashi, M. Konoto, and K. Koike: Rev. Sci. Instrum. **75**, 2003 (2004).

16) W. Wien: Ann. Phys. 65, 444 (1898).

17) R. L. Seliger: J. Appl. Phys. 43, 2352 (1972).

18) K. Tsuno, M. Terauchi, and M. Tanaka: Optik 78, 71 (1988).

19) H. Matsuyama and K. Koike: J. Electron Microsc. 43,157 (1994).

20) J. Barnes, L. Mei, B. M. Lairson, and F. B. Dunning: Rev. Sci. Instrum. **70**, 246 (1999).

21) S. Qiao, A. Kimura, A. Harasawa, M. Sawada, J.-G. Chung, and A. Kakizaki[:] Rev. Sci. Instrum. **68**, 4390 (1997).

22) G. Chrobok and M. Hofmann: Phys. Lett. 57a, 257 (1976).

23) J. Kirschner and K. Koike: Surface Science 273, 147 (1992).

24) K. Koike and T. Furukawa: Phys. Rev. Lett. 77 3921 (1996).

25) K.Mori, M. Yamazaki, T. Hiraki, H. Matsuyama, and K. Koike: Phys. Rev. B **74**, 026405–1–2(2006).

26) D. L. Abraham and H. Hopster: Phys. Rev. Lett. 30, 1352(1987).

27) K. Koike: Microscopy 62, 177(2013).

28) T. Kohashi, M. Konoto, and K.Koike: J. Electron Microsc. **59**, 43(2010).

29) L. W. Swanson and G. A. Schwind: Handbook of Charged Particle Optics 2nd Edition, J. Orloff, ed. p.1-28, CRC Press,2008.

30) Y. Ose, Y. Higuchi and S. Shirakawa: Inst. Phys. Conf. Ser. No. 119 EAMG 91, 201(1991).

31) O. Portmann, A. Vaterlaus, and D. Pescia: Nature 422, 701 (2003).

32) M. Konoto, T. Kohashi, K. Koike, T. Arima, Y. Kaneko, T. Kimura,

and Y. Tokura: Phys. Rev. Lett. **93**, 107201 (2004).

33) T. Kohashi and K. Motai: Microscopy 62, 429(2013).

34) T. Kohashi, K. Motai, T. Nishiuchi, T. Maki, and S. Hirosawa: J. Mag. Soc. Jpn. **33**, 374(2009).

35) R. Pauthernet, Y. Barnier and G. Rimet: J. Phys. Soc. Jan. 17, 309(1972).

36) B. Lee. R. W, Alsenz, and A. Ignatiev: Phys. Rev. B. 17, 1510(1978).

37) T. Okuda, Y. Takeichi, Y. Maeda, A. Harasawa, I. Matsuda, T. Kinoshita and A. Kakizaki: Rev. Sci. Instrum.**79**, 123117(2008).

38) G. Steierl, G. Liu, D. Iorgov and J. Kirschner: Rev. Sci. Instrum., **73**, 4264 (2002).

SEM における Type-II 磁区コントラストの形成メカニズム

生田 孝

大阪電気通信大学工学部電気電子工学科

目 次

1. まえがき

2. SEM における Type-II 磁区コントラストの形成メカニズム

- 2-1 Type-II 磁区コントラストの解析
- 2-2 Type-II 磁壁コントラストの形成メカニズム
- 2-3 Type-II 磁区、磁壁コントラストのモンテカルロ・シミュレーション
- 2-4 Type-II 磁区、磁壁コントラストのモンテカルロ・シミュレーション計算結果

3. Type-II 磁区コントラストの観察手法

- 3-1 背面散乱電子検出器の配置
- 3-2 トポグラフィックコントラストの除去

4. Type-II 磁区コントラストの動的観察手法

- 4-1 周期現象の SEM 観察手法
- 4-2 ビデオ信号ゲートを用いたポイントサンプリング方式ストロボ SEM による 動的磁区観察
- 4-3 ラインサンプリング方式ストロボ SEM による商用周波数での動的磁区観察

5. おわりに

引用文献

付録

1. まえがき

強磁性体中に形成される磁区の観察は、磁気特性の評価のうえできわめて重要である。 今日、多くの磁区観察法が開発されているが、その一つとして走査型電子顕微鏡(SEM) を用いる磁区観察法があり、試料の比較的深い部分の磁化を観察・評価できる特徴がある。 本稿ではこの Type-II 磁区コントラスト観察の歴史的背景を解説した上で、磁区および磁壁 コントラストの形成メカニズムとシミュレーション結果について述べる。さらにこの観察 法は商用周波数で使用される電磁鋼板(珪素鋼)の鉄損評価にとって有用である。このた め、著者らは励磁周波数に同期した動的磁区観察に適用すべく、SEM のストロボ化を試み た。いずれも 1970 年代から 1980 年代にかけて実施した研究である。技術的には今日、さ らに容易に実現できるものではあるが、当時の限られたエレクトロニクス技術を用いて実 現したところをご覧頂きたい。

1968年、一軸磁気異方性材料の SEM を用いた磁区観察が、Joy と Yakubovics によって 報告されている¹⁾。この種の磁性体では表面から漏洩磁束が存在し、二次電子の軌道が曲げ られ二次電子信号にコントラストを生じる。Type-I 磁区コントラストと命名されたが、分 解能があまり高くなく実用的ではなかった。他方、Fe などの立方型磁気異方性磁性体(還 流磁区構造を形成し強い漏洩磁束を生じない)の SEM 磁区観察が 1960 年代の終わりから 1970 年第始めにかけて報告され始めた。1969 年 Philibert と Tixer²⁾によって試料電流を信 号として、さらに 1973 年には Fathers ら^{3,4)}、Gervais ら⁵⁾、Newbury と Yakowits⁶⁾に よって背面散乱電子を信号とした磁区観察が報告されるに至った。試料電流像が背面散乱 電子像の裏返しであることを考えると、これらの磁区コントラストは対応する磁区内部の 飽和磁化方向によって、試料内で拡散する電子の軌跡が変わり、それによって試料表面か らの背面散乱電子の脱出量が異なることによる、と考えられた(Fathers 6^{3,4)})。これらを Type-II 磁区コントラストと呼ぶ。

1973年の Type-II 磁区コントラストの報告を受けて、著者らはこのようなコントラスト が実際に SEM で観察可能かどうか検証実験を試みた。最初に磁区観察を試みた試料は、ト ランスコア材料として用いられる、FeSi3wt%単結晶である。試料は(100)面に切り出した ものを用いた。試料単結晶をエメリー紙で機械研磨後、酢酸と塩素酸の混合液中で約3分 間の電解研磨を行う。その後残留歪を除去する目的で、真空中、800°C のアニールを施す。

前述の Fathes らの Type-II 磁区コントラスト解釈に従えば、SEM の電子プローブに対 して試料を傾斜させてセットし、鏡面反射に近い方位に背面散乱電子検出器を配置すれば 良い。幸い半導体素子観察用の JEOL、U-2型 SEM が使用できたので、半導体用大型試料 ステージに、コイルを巻いたコの字状磁気コアを斜めに固定し(試料励磁用)、その上に試 料を固定した。背面散乱電子検出器としては約 15mm²の Li ドープ Si 検出器を、試料から 見て鏡面反射に近い方位に 15mm 程度離して固定した。図 1-1 に励磁機構を含めた傾斜試 料台と、最初に磁区像であると確認された写真を示す。


図 1-1. SEM による Type-II 磁区コントラスト観察用傾斜試料台(励磁機構含む)およ び背面散乱電子検知器 (Si-solid detector)、ならびに観察された FeSi3wt%中の磁区像、 (a)励磁前、(b)励磁後。電子ビーム加速 45keV。

残念なことに、当時の著者はこの種の磁性体材料の磁区パターンに詳しくなく、どの様 な磁区が観察できるか全く判っていなかった。最初の実験では試料表面の傷や電解研磨の むらによる凹凸のコントラスト(トポグラフィックコントラスト)が観察されるのみで、 磁区らしき像は全く観察されない。ビデオ信号の増幅率(コントラスト)を上げるとトポ グラフィックコントラストのみが強調されてしまった。後述するようにトポグラフィック コントラストは背面散乱電子の検出方向によって変化し、ある検出方向でほぼキャンセル される。当時、Si-検出器の位置を何度か調整すると、トポグラフィックコントラストはか なり小さくなり、なにやら直線的な境界を持つ白黒のコントラストが観察できる様になっ た(図 1-1(a))。これが磁区かもしれないと期待し、パルス的に試料を励磁したところ、磁 区と思われる部分の先端が分裂し(同図(b))、まさに磁区であることが判明した ?。

次章では Type-II 磁区コントラストの大きさ、分解能などについて、解析と、モンテカル ロシミュレーションの結果を示す。さらに磁区コントラストが付かない場合でも磁壁に添 って直線状のコントラストが生じる(Type-II 磁壁コントラスト)ことも説明する。

2. SEM における Type-II 磁区コントラストの形成メカニズム

2-1 Type-II 磁区コントラストの解析

以下の解析では伝統により CGS 単位系を使用する。まず図 2-1 には定性的な Type-II 磁 区コントラストの発生機構を図示した。よく知られているように、磁束ベクトル **B**の中で、 電荷-e、速度ベクトル **v**の電子が受けるローレンツ力 **F**は、ベクトル積により、

$$\boldsymbol{F} = -(e/c)(\boldsymbol{v} \times \boldsymbol{B}), \tag{2-1}$$

と表現される。ここで c は光速である (CGS 単位系でのローレンツ力の式)。 磁束ベクトル **B**は、磁場ベクトル **H**と磁化ベクトル **M**により、CGS 単位系では、

$B = H + 4\pi M$,

(2-2)

である。実用的に用いられる Fe 等の立方型磁気異方性を有する飽和磁化 M_s の磁性体で、 磁壁面に磁極が形成されない還流磁区構造の場合には、 $M=M_s$ と見なせる。さらに外部磁 場も無ければ H=0 である。よって $B=4\pi M_s$ と考えて良い。磁性体内に侵入した速度 v の



図 2-1. SEM 観察時における、傾斜配置の強磁 性体中での入射電子拡散の様子。中央の磁壁か ら見て左上の磁区に電子ビームが照射されれ ば背面散乱電子が増加、逆に右下の磁区に照射 されれば背面散乱電子が減少する。

F= -(e/c)(**v**x 4π**M**s)のローレンツ 力を受ける。

電子は各磁区の磁化方向 Ms に応じ、

図 2-1 に示された傾斜配置された 強磁性体試料中の磁区に電子ビーム が照射される場合を考える。磁壁か ら見て左上の磁区(磁化方向は紙面 垂直上方)の中では、侵入電子は下 方に移動しつつ拡散しているので、 全体として右方向のローレンツ力を 受け、試料表面から脱出し背面散乱 電子となる確率が高まる。一方、同 図右下の磁区(磁化方向は紙面垂直 下方)では、逆に右方向のローレン ツ力を受け、背面散乱電子となる確 率が低くなる。この結果、両磁区で 背面散乱係数に差が生じ、これを電 気的に検出する事により Type-II 磁 区コントラストが観察される。

実用的な観点からは、このような磁区コントラストの大きさや分解能はまことに重要で ある。Archardの入射電子完全拡散モデル⁸⁾を磁性体に応用することによってそれらの概 略値とその傾向を求めることが出来る。入射電子完全拡散モデルとは電子プローブの固体 中への侵入状況を、深さ X_d (完全拡散距離)までの直線的侵入とその点からの等方的拡散 で近似するものである。ローレンツ力の影響により長さ X_d の直線的侵入路が円弧になるこ と、ならびに背面散乱係数の入射角 α に関する依存性 $\eta(\alpha)$ を用いれば、全背面散乱電子に対 する単位磁束 $B(\approx 4\pi M_s, G)$ 当たりの Type-II 磁区コントラスト($\Delta\eta(\alpha)/\eta(\alpha)/B$ は、

 $(\Delta \eta(\alpha)/\eta(\alpha)) / B = d\{\ln \eta(\alpha)\} / d\alpha \cdot (1.485 \ge 10^{-5}) \cdot X_{d} \cdot E_{0}^{-1/2}$ (2-3)



図 2-2. 電子ビーム全背面散乱係数 η(α)の入射角α依存性に関する Drescher らの実験結果。

と求められる。ただし X_d には(μ m)、電子プロー ブ加速電圧 E_0 には(eV)の単位を用いた。

Drescher ら⁹ により実験的に求められた、入 射角αに関する背面散乱係数の依存性η(α)を図 2-2 に示す。

 X_{d} として E_{0}^{2} にほぼ比例する形の、Archard の式⁸⁾ を採用すれば、Type-II 磁区コントラスト の大きさは $B(\approx 4\pi Ms)$ に比例し、かつ $E_{0}^{3/2}$ に比 例して増大することがわかる。一方磁区コント ラストの分解能は完全拡散距離 X_{d} に比例するの で、 E_{0}^{2} に比例して悪化することが理解される。 例えば Fe 試料($4\pi Ms \approx 21600$ G)とすれば、 50keV 加速電圧の SEM で、試料を 60°に傾斜さ せた時の磁区コントラストの分解能は X_{d} の値

より 1µm 程度以下であるが、磁区コントラストの大きさは 1%をかなり下回る値になる。 SEM 加速電圧の増加により磁区コントラストの大きさを増やすことは出来るが、それ以上 に激しい分解能の低下がおきる。

Fe 試料に比べ、相対的に飽和磁化 *M*s が小さい強磁性材料、例えば磁気ヘッドに用いら れている Mn-Zn フェライト(4π *M*s \approx 4800 G)では、50keV 加速電圧の SEM で 0.1%程度 の磁区コントラストが予想され、磁区コントラストの検出が困難になる。このため、分解 能を犠牲にして、より高い加速電圧の SEM (100-200 k eV)が使用される^{10,11)}。

図 2-3 には表面をスクラッチされた Mn-Zn フェライト中磁区を 100keV 加速電圧で観察 した結果を示す。図 2-3(a)ではやや分解能の落ちた磁区像が観察されているが、試料を 90° 回転させ、通常の磁区コントラストが観察されないようにすると(同図(b))、電子線プロー ブに平行な 180°磁壁に対して、ごく弱い線状の白または黒の線状コントラストが観察され た。高加速電圧 SEM を用いたために線状コントラストが太くなり観察しやすくなったもの



図 2-3. 100keV 加速電圧 SEM による、スクラッチされた Mn-Zn フェライト($4\pi Ms \approx 4800$ G)の磁区コントラスト観察結果、(a)通常の Type-II 磁区コントラスト、ならびに、(b)試料 90°回転によりほぼ磁区コントラストが消失した際、180°磁壁部分に弱い白黒の弱い磁壁コントラストが観察される。

と考えられる。これらの線 状コントラストを Type-II 磁壁コントラストと呼ぶ。

Type-II 磁壁コントラス トの白黒は、180°磁壁両側 での対抗する磁化ベクト ル方向組み合わせで決ま る。それぞれの磁化ベクト ル方向組み合わせの下で の電子線拡散現象に深く 関わっている。次節ではこ れら Type-II 磁壁コントラ スト形成メカニズムを議 論する。

2-2 Type-II 磁壁コントラストの形成メカニズム



図 2-4.180°磁壁両側での入射電子拡散状況。矢印はロー レンツ力のおおよその向きを示す。(a)背面散乱係数ηが 増加し、白い磁壁コントラストが観察される場合、(b)背 面散乱係数ηが減少し、黒い磁壁コントラストが観察さ れる場合。180°磁壁両側での飽和磁化の向きに注意。

図 2・4 に示すように、強磁 性体中に 180°磁壁があり、 磁壁に並行に電子線が入射 する状況を考える。180°磁 壁両側の飽和磁化ベクトル *Ms*は互いに逆方向を向くが、 同図(a),(b)に示すように2通 りの組み合わせがある。電子 線プローブがちょうど 180° 磁壁の真上に照射された場 合、試料中での電子線の拡散 はどちらも 180°磁壁の両側

に対して対称であるが、矢印で示したローレンツ力の向きは、図 2-4(a)の場合 180°磁壁の 両側に対して何れも試料方面方向に向く傾向があり、背面散乱係数を増加させるように作 用する。一方、同図(b)の場合にはローレンツ力の向きは試料内部に向く傾向にある。これ は背面散乱係数を減少させるように作用する。この結果、180°磁壁両側の飽和磁化ベクト ル Ms の向きに応じて、前者では白、後者では黒の磁壁コントラストが生じる。

電子線プローブが 180°磁壁から入射電子の最大拡散距離以上離れた位置に照射された場

合には、拡散電子は一方の飽和磁化ベクトルのみによるローレンツ力を受ける。この作用 は照射点から相対的に左側、および右側に拡散してゆく電子について、一方は試料方面方 向に向く傾向試料内部に向く傾向にあるが他方は逆に試料内部に向く。この結果、全背面 散乱電子の量は相殺されて変化せず、磁壁コントラストは生じない。さらに電子線プロー ブが 180°磁壁から入射電子最大拡散距離以内に照射された場合には全背面散乱電子の量は 完全には相殺されず、磁壁コントラストが残留する。図 2-4 の配置では 180°磁壁からの電 子線プローブ照射位置について左右対称な磁壁コントラストが観察されることは容易に理 解できよう。

Type-II 磁壁コントラストのみならず Type-II 磁区コントラストについても、磁壁近傍で のコントラスト変化を解析することは、SEM による Type-II 磁区コントラスト観察法の分 解能を判断するために重要である。2-1 節において磁区コントラストの分解能がほぼ入射電 子の完全拡散距離 Xd に対応すると述べたが、定量的な分解能とコントラスト値を求めるに は残念ながら不十分である。さて SEM や電子線マイクロアナライザーでは入射電子の固体 内での拡散状況を複雑な境界条件の下で解析する必要があり、従来よりモンテカルロ・シ ミュレーションと呼ばれる、乱数を用いた確率的解析計算手法が用いられている。

背面散乱電子による Type-II 磁区コントラストの解析にモンテカルロ・シミュレーション を使用する最初の試みは、1973 年に D. E. Newbury らによって報告¹²⁾ されている。著者 の所属する研究室においてもすでに SEM や電子線マイクロアナライザーの定量解析を目 的としてモンテカルロ・シミュレーションプログラムを作成しており、彼らの報告を受け て早速ローレンツ力の組み込みを実施、SEM による実験と合わせ磁区コントラストの解析 を試みた⁷。

2-3 Type-II 磁区、磁壁コントラストのモンテカルロ・シミュレーション

図 2-5 にモンテカルロ・シミュレーション ^{7,11)} での侵入電子の散乱と軌道を示した。固体内に侵入した keV 電子は、固体構成原子との弾性衝突によりその方向を変える(弾性散乱)。試料が複数種の原子で構成される場合、第 i 種の原子の衝突断面積 σ (衝突電子のエネルギーと原子のポテンシャル分布に関係する)と i 原子密度 Ni で、i 種原子までの弾性衝突平均自由行程 $\lambda_i = (N_i \cdot \sigma)^{-1}$ が決まる。原子を指定しない場合、次の弾性散乱までの直線的飛行距離 ΔS は、原子を指定しない平均自由行程 $\lambda = (\Sigma \lambda^{-1})^{-1}$ を平均値とするポアソン 過程として、0-1 の一様乱数 R により確率的に、 $\Delta S = -\lambda \cdot \ln R$ で定められる。また i 原子との弾性散乱の散乱角度分布は、衝突微分断面積 $d\sigma/d\Omega$ により確率的に記述される。どの原子種に衝突するかの確率は λ_i^{-1} に比例するので、これも一様乱数 R で決める。対象原子がランダムに分布しているとみなして良い場合には散乱の方位角 ϕ_j は0から 2 π rad の範囲で 一様に分布すると考えて、一様乱数 R により $\phi_j = 2\pi \cdot R$ で与えられる。

i原子との弾性衝突による散乱角 θ_i は微分衝突断面積 d $\sigma/d\Omega$ (シミュレーションではス クリーンドラザフォード公式を使用)に従って 0-1 の一様乱数 Rを用いて決める。角度分

7



図 2-5. モンテカルロ・シミュレーションでの侵入 電子の散乱と軌道のモデル。

布は前方方向に集中している。

侵入電子は弾性散乱の位置か ら次の弾性散乱までの自由飛行 中も軌道周囲の原子に接近し、そ の内殻電子や価電子、あるいは自 由電子を励起して原子をイオン 化することでそのエネルギーを 失って行く(電子励起非弾性散 乱)。電子を励起するわけではな いが周囲原子を揺り動かし、フォ ノンを励起することによっても そのエネルギーを失う(フォノン 励起非弾性散乱)。一度の非弾性 散乱によるエネルギー損失が小 さくても非弾性散乱の確率は弾 性散乱よりもかなり大きいので、

侵入電子はその飛行経路で連続的にエネルギーを失うとする近似が適用可能である(単位 飛行距離あたりのエネルギー損失を記述するベーテの式、(dE/dS)_{Bethe})。この近似によれば、 j+1番目散乱点の侵入電子のエネルギー E_{j+1} は、j+1番目散乱点でのエネルギー E_j と j番目 散乱点から j+1番目散乱点までの自由行程 ΔS_j によって、 $E_{j+1} = E_j - (dE/dS)_{Bethe} \Delta S_j$ で求 まる。

電子軌道のシミュレーションは、電子のエネルギーがあらかじめ設定した最低値(1keV 程度)になる(吸収電子)、あるいは電子が試料下面を透過する(透過電子)、試料表面か ら脱出する(背面散乱電子)場合に停止させる。乱数を用いる確率的計算法であるので統 計誤差があり、軌道シミュレーションの回数(入射電子の個数)は多いことが望ましく、 少なくとも10000回程度は必要である(計数した電子数の平方根程度の統計誤差がある)。

前述したモンテカルロ・シミュレーションは本来 Type-II 磁区、磁壁コントラストの計算 を目的としたものではない。磁区、磁壁コントラストに適用する為に、以下のプログラム 追加を行った。

(1) 180°磁壁の設定と入射電子自由行程区間でのローレンツ力ベクトルの計算。

(2) ローレンツカに対応して自由行程での直線軌道を緩い円弧軌道に置き換え。

付録に、一様乱数発生ルーチンを除いた(コピーライトによる公開制限)全プログラム を記載した(Fortran 言語使用)。適宜、一様乱数発生ルーチンを追加して使用されたい。

2-4 Type-II 磁区、磁壁コントラストのモンテカルロ・シミュレーション計算結果 前節で述べたモンテカルロ・シミュレーションを用いて得られた Type-II 磁区、磁壁コン トラスト計算結果の例を示す。図 2-6(a)は Fe 試料中へ 50-200keV 電子を 45°入射させた 時の試料内拡散の様子を示す。ほぼ加速電圧 Eoの2 乗に比例し拡散域が膨張していること がわかる。同図(b)は Mn-Zn フェライト磁区コントラスト加速電圧依存性の計算結果である (全背面散乱電子を検出した場合)。実線は 2-1 節での入射電子完全拡散モデルによる解析、 黒丸は前節のモンテカルロ・シミュレーションによる計算結果を示す。両者はかなり良く 一致し、入射電子完全拡散モデルが悪くない近似であることが判明した。



図 2-7 には Fe 試料(4 πMs = 21600 G)、60°入射の条件で、電子線プローブ位置により 180°磁区のコントラストが変化する様子をモンテカルロ・シミュレーションにより示した¹³⁾。信号として全背面散乱電子を検出する。同図(a)は 45keV 加速、(b)は 30keV 加速の場合である。45keV 加速の磁区コントラストは 30keV 加速の場合の約2倍で、ほぼ加速電圧 Eoの 3/2 乗の関係が裏付けられている。一方、磁区コントラストはどちらも 180°磁壁位置に対して反対称ではなく、さらに磁壁上で僅かなコントラスト低下をともなう。この現象は後述する磁壁コントラストと深く関わっている。



図 2-7. モンテカルロ・シミュレーションにより Fe 試料(4πMs = 21600 G)、60° 入射の条件で、電子線プローブ位置により磁区のコントラストが変化する様子。(a) 加速 45keV、(b) 30keV。 磁区コントラストは 180°磁壁位置から見て反対称では ない。さらに磁壁上でわずかではあるが鋭いコントラスト低下を伴うように見える。

第1章で示したように、現実の Type-II 磁区コントラスト実験では、全背面散乱電子で はなく制限された検出方位の背面散乱電子を検出することが多い。この状況に従って磁区 コントラストのプローブ位置による変化を検出方位別にモンテカルロ・シミュレーション で求めた結果を図 2-8 に示す。Fe 試料(4 π Ms = 21600 G)、60°入射、加速 30keV の条 件である。同図(a)は全背面散乱電子、(b) は低取り出し角前方背面散乱電子、(c) は高取 り出し角前方背面散乱電子、(d) 後方背面散乱電子を信号とする。



図 2-8. モンテカルロ・シミュレーションにより Fe 試料($4\pi Ms = 21600 \text{ G}$)、 60° 入射、加速 30 k eV の条件で、電子線プローブ位置により磁区のコントラストが変 化する様子。(a) 全背面散乱電子、(b)低取り出し角前方背面散乱電子、(c)高取 り出し角前方背面散乱電子、(d)後方背面散乱電子を信号とする。

図 2-8 (b)の低取り出し角前方背面散乱電子を信号とする場合には、信号量は少ないが 全背面散乱電子を上まわる磁区コントラストと分解能が得られている。(c)の高取り出し角 前方背面散乱電子では、コントラストは高いが分解能がかなり低下する。(d)の後方背面 散乱電子を信号とする場合はコントラスト、分解能ともに大幅に低下するのでこの検知器 方位は採用すべきではない。

このように磁区コントラストは検出方位に大きく依存する。一方、本章 2 節の議論によ り電子線プローブを 180°磁壁に対して平行にすると、磁区コントラストは消失するが、180° 磁壁に添って線状の type-II 磁壁コントラストが観察できるようになる。図 2-9 には Fe 試 料(4 π Ms = 21600 G)、60°入射、磁区のコントラストは観察されない入射条件で、電子 線プローブ位置により磁壁コントラストが変化する様子を検出方位別に求めた結果を示す。

図 2-9 (b) の、低取り出し角前方背面散乱電子を信号とする場合には、信号量は少ない が全背面散乱電子と同程度で、より分解能の高い磁壁コントラストが得られている。(c) の 高取り出し角前方背面散乱電子では、全背面散乱電子と同程度の磁壁コントラストと分解 能が得られている。ただし信号量は少ない。(d) の後方背面散乱電子を信号とする場合は コントラストはあまり変わらないが、分解能は大幅に低下する。何れの取り出し角でも信 号量は少なく、磁壁コントラスト SN 比の低下が予想される。



図 2-9. モンテカルロ・シミュレーションにより Fe 試料(4 π Ms = 21600 G)、60° 入射、加速 30 k eV の条件で、電子線プローブ位置により磁壁のコントラストが変 化する様子。(a) 全背面散乱電子、(b) 低取り出し角前方背面散乱電子、(c) 高取 り出し角前方背面散乱電子、(d) 後方背面散乱電子を信号とする。

3. Type-II 磁区コントラストの観察手法

3-1 背面散乱電子検出器の配置



図 3-1. Type-II 磁区、磁壁コントラスト観察時の背面散
 乱電子検出器の配置と、試料表面粗さの影響

著者らの最初の磁区観察実験では、試料を電解研磨し 鏡面に仕上げた。しかし図 3-1 に示すようにわずかなう ねりが残存していたため、そのトポグラフィックコント ラストが磁区コントラストを卓越し、失敗に終わったこ とは第1章で述べた通りである。その対策として背面電 子検出器の位置を動かし検出方向を変えることでほぼト ポグラフィックコントラストを抑制できた。これが Type-II 磁区観察成功のキーポイントであった。

しかしながら現実の強磁性体材料では、表面の研磨処 理を行えないことが多い。その理由は磁区構造が表面粗 さや表面残留応力に極めて敏感であることによる。また 表面処理を施さずに表面粗さや残留応力そのものの磁区

構造への影響を評価したいことも多い。このためトポグラフィックコントラストを抑制で きる検出器位置(検出方向)を詳しく検討する必要がある。



3-2 トポグラフィックコントラストの除去

図 3-2. 特定方向配置(LOW, MID, HIGH)3 検出器に対する単 位立体角あたりの背面散乱電子収量 η/Ω と試料傾斜角 α との関係。Fe 試料、加速電圧 *E*o=15,30,45,90 keV でのモン テカルロ・シミュレーションの結果。 図 3-2 のようにモン テカルロ・シミュレ ーションで、異なる 検出方向別に試料 傾斜角 α に対する単 位立体角当たりの 背面電子収量 (η / Ω) を求める。

グラフのピーク の試料傾斜角がト ポグラフィックコ ントラスト最小の 条件である。*E*0への 依存性は少ない。ま た原子番号 Z への 依存性も少ないこ とが判っている¹⁴。

4. Type-II 磁区コントラストの動的観察手法

4-1 周期現象の SEM 観察手法

1970年代より半導体デバイスの高速応答特性の SEM 観測を目的に、周期現象の特定位相に合わせて電子ビームをチョップするポイントサンプリング方式ストロボ SEM が開発されている。その原理を図 4-1(a)に示す。一方周期現象がかなり低速で、現象周期よりかなり高速にラインスキャンが出来る程度に周期現象がかなり低速であれば、1 走査ラインをサンプリングの対象とすることも可能である。その原理を図 4-1(b)に示し、ラインサンプリング方式ストロボ法と呼ぶことにしたい。



図 4-1. 周期現象の SEM 観察手法、(a) ポイントサンプリング方式 (Point-sampling Stroboscopy)、(b) ラインサンプリング方式 (Line-sampling Stroboscopy)

図 4-2 に示すように SEM においては高速スキャンモードがあり、TV フレームレート(30 - 60 フレーム/秒) での高速スキャンリアルタイム観察が可能ではあるが、周期現象の特定 位相を画像化するには、ぶれを抑えるため周期現象の周波数が数 Hz 以下に限定される。

またポイントサンプリング方式の通常ストロボ SEM では GHz 高速繰り返し現象に対応 できるが、1 画面の取り込み時間は横画素数 x 走査線数(全画素数)と現象周期の積となる。



図 4-2. 周期現象 SEM 観察手法の適用周波数領域。

画素数 600x600 で 360 秒の取 り込み時間では、現象周期1 msであり繰り返し周波数では 1kHz(実用的下限)である。

一方、ラインサンプリング 方式では走査線の数と現象周 期の積で画像取り込み時間が 決まる。現象繰り返し周波数 の下限は1Hz程度、また周波 数上限は電子ビーム走査の応 答から、1-数kHz程度になる。 4-2 ビデオ信号ゲートを用いたポイントサンプリング方式ストロボ SEM による
 動的磁区観察

さて SEM による Type-II 磁区観察法においても、交流励磁磁場に対する動的応答の観察 は実用強磁性体の評価に大きく貢献する。前節の説明によれば、約 1kHz 以上の交流励磁の 下での動的磁区観察にはポイントサンプリング方式のストロボ SEM が使用可能である。こ の周波数領域ではオーディオ用トランスコア材が格好の観察試料と考えられた。しかし 1970 年代では電子ビームチョップ型のストロボ SEM は簡単に利用できるものではなかっ た。このため周波数が低くてよいことを利用して電子ビームチョップによらない方式のス トロボ化を考案した。磁区観察用の試料台が取り付け可能な SEM であれば、鏡体を改造せ ずにストロボ化が可能である。

ポイントサンプリング方式ストロボ SEM で 1kHz の交流励磁磁区観察では、サンプリン グ窓は 10µs 台でよい。このため電子ビームのチョッピングに換えビデオ信号を直接ゲート することで SEM をストロボ化する。これには 1970 年代半ばに入手容易となった FET や オペ AMP が使用できた。図 4-3 にはビデオ信号ゲートを用いたポイントサンプリング方式 ストロボ SEM システムブロック図と動的磁区観察結果を示す¹⁵⁾。加速 45keV、FeSi3wt% 試料、20µs ゲート時間(サンプリング窓)で、1kHz の励磁下の動的磁区観察が実現でき た。位相角 45°おきの 8 画像で、1 画像あたり 500 秒の画像収集時間である(合計 1 時間強)。



図 4-3. ビデオ信号ゲートを用いたポイントサンプリング方式ストロボ SEM システ ムブロック図と動的磁区観察結果(加速 45keV、FeSi3wt%試料、1kHz 励磁)

4-3 ラインサンプリング方式ストロボ SEM による商用周波数での動的磁区観察

交流励磁磁場に対する動的磁区応答の観察が強磁性体の評価に重要な(需要が多い)実 用磁性体に商用電力トランス用電磁鋼板がある。励磁周波数が50-60Hz に限定されている ことで、SEM による動的観察手段の、高速スキャンモード、通常ポイントサンプリング通 常ストロボモードいずれもが適用不可能な周波数領域であり、唯一ラインサンプリングス トロボモードのみが適用可能である。

電磁鋼板製造企業の要請もあり、著者らは 1980 年代前半のアナログ・ディジタル IC を 用いて、既存 SEM の走査回路、ビデオ回路に追加する形の、ラインサンプリング方式マル チフレームストロボ制御システムを製作した^{16,17)}。

図 4-4 にシステムのブロック図を示す。マスタークロック波形は2分周さらに 16 分周さ れ、3 つの PLL-IC を駆動、同期した商用周波数のサイン波、コサイン波と8倍周波数の三 角波を生成する。サイン波は試料励磁用として用いる。また三角波は電子プローブと表示 用 CRT の水平走査に用いられる。特にビデオ信号のゲート回路はもちいず、CRT のブラン キングでラインサンプリングを実現できる。

CRT の垂直、水平走査には各位相のストロボ画像をマルチフレーム表示する目的で、2



図 4-4. 商用周波数動的磁区観察用ラインサンプ リング方式マルチフレームストロボSEMのシス テムブロック図

個の 2bit DAC により、各位相像に合 わせたオフセット電圧が 2 個の DAC から加えられる。これにより同時に 8 位相までのストロボ像を同一の CRT に同時表示可能になり、全観察時間 を大幅に短縮できるようになった。

8 フレーム表示以外にも、4 フレー ム、1 フレーム表示の選択が可能で、 開始位相の選択と合わせ、1980 年代 に使用され始めた EEPROM がロジ ック・シーケンサーとして用いられ ている。

ー見、コサイン波の PLL は不要で あるように見えるが、低コントラス トの Type-II 磁区観察用としては不 可欠なものである。励磁コイルから の誘導などの影響で検出器信号には 常に誘導雑音が混入するが、サイン 波、コサイン波を適切な重みを付け 加算し、ビデオ信号に加えて誘導雑 音の補償を行う目的がある。



図 4-5. ラインサンプリング方式 8 フレームス トロボ SEM による 60Hz 励磁下のの動的磁区 観察(FeSi4wt%, SEM 電子ビーム加速 45keV)

図 4-5 にはラインサンプリング方 式 8 フレームストロボ SEM での、 初動的磁区観察結果を示した¹⁶⁾。 FeSi4wt%試料、60Hz 励磁下での 実験である。SEM 電子ビーム加速が 45keV と低く、0.2%程度の磁区コン トラストであるため画質はあまり良 好ではない。

一方、SEM ビーム加速を高めると、
 画質は格段に向上する。図 4-6 は
 SEM 電子ビーム加速が 200keV で
 FeSi4wt%試料、60Hz 励磁下の実
 験である。コントラストは約 10 倍
 で、実用的な電磁鋼板特性評価手法
 になったと判断された ^{17,18,19,20}。



Dynamic Observation of Domains under 60 Hz Drive (E_0 = 200 KeV, α = 45°)



Magnetization Vector in the Domains of FeSi (100) Sample

図 4-6. 200kVSEM を用いた、ラインサンプリング方式 8 フレームストロボ SEM による 60Hz 励磁下の動的磁区観察(FeSi3wt%)

5. おわりに

Type-II 磁区コントラストの研究を開始した、大阪大学大学院生の当時(1974 年ごろ)、 著者はカー効果などの光学的磁区観察法に比べ、高い空間分解能を有することがこの磁区 観察法の特徴と考えていた。Type-II 磁区コントラストは、50keV以下の電子ビーム加速で は光学的磁区観察法の空間分解能に匹敵、あるいは上回るが、高い飽和磁化を持つ Fe 系磁 性体であっても観測されるコントラストは真に小さい。電子ビーム加速を高めると磁区コ ントラストは大きくなるが、逆に分解能はコントラストの改善を上回るほどに悪化する。

このような悩みを持ちながら研究を進めていた時、当時指導教官であった志水隆一先生 を通じ、磁性体を扱う企業の研究者の方々と共同研究する機会を得た。そこで理解したこ とは、実用磁性体の特性評価にとって必ずしも分解能が重要なのではなく、試料内部での 磁区の振る舞いがわかる観察法が必要であるとのことであった。高加速 SEM を用いた Type-II 磁区コントラスト観察法は、空間分解能は劣るが、その分試料の表面よりやや内部 の磁化を観察可能である。この状況は他の磁区観察法では実現できない。

大学院を終了して大阪電気通信大学に奉職(1976)した後も、志水隆一先生のご指導の 下で継続して Type-II 磁区コントラスト観察法の研究を進め、ラインサンプリング方式によ る動的磁区観察を実現できたことは著者にとって誠に幸いであった。

大学院在学時、ならびに大阪電気通信大学に奉職後も継続してご指導を賜った、大阪大 学名誉教授、志水隆一先生に心より御礼申し上げます。また磁気ヘッドに用いられる Mn-Zn 系フェライトの磁区観察を共同して行った、東芝生産技研の木下正治博士(現ニッタ・ハ ース)、電磁鋼板の動的観察を共同して行った、新日本製鐵の薮本政男博士に厚く御礼申し 上げます。また当時大阪大学大学院生であった、間瀬比呂志氏には共同研究者としてライ ンサンプリングストロボ装置の組み立てとストロボ磁区観察実験・解析を行っていただき ました。心より感謝いたします。

17

引用文献

- 1) D. C. Joy and J. P. Jakubovics: Phil. Mag. 17 (1968) 61-9.
- 2) J. Philibert and R. Tixier: Micron 1 (1969) 174-86.
- 3) D. J. Fathers, D. C. Joy and J. P Jakubovics: Phil. Mag. 27 (1973) 765-8.
- 4) D. J. Fathers, an D. C. Joy d J. P. Jakubovics: *Scanning Electron Microscopy*, eds.
 O. Johari and I. Corvin (IIT Research Institute Chicago, Illinois, 1973) pp. 259-73.
- A. Gervais, J. Philibert, A. Riviers and R. Tixier: Proc. 8th Nat. Conf. Electron Probe Analysis, New Orleans, 1973, paper No. 52.
- 6) D. E. Newbury, H. Yakowitz: *AIP Conf. On Magnetism and Magnetic Materials 1973*, AIP Conf. Ser. No. 18, (AIP, New York, 1974) pt. 2, p. 1372.
- 7) T. Ikuta and R. Shimizu: Phys. Status Solidi (a) 23 (1974) 605-613.
- 8) G. D. Archard: J. appl. Phys. **32** (1961) 1505-9.
- 9) H. Drescher, L. Reimer and H. Seidel: Z angew. Phys. 29 (1970) 331-6.
- R. Shimizu, T. Ikuta, T. Yamamoto, M. Kinoshita and T. Murayama[:] Phys. Status Solidi (a) **26** (1974) K87-8.
- R. Shimizu, T. Ikuta, M. Kinoshita, T. Murayama, H. Nishizawa and T. Yamamoto: Japanese J. appl. Phys. 15 (1976) 967-81.
- 12) D. E. Newbury, H. Yakowitz and R. L. Myklebust: Appl. Phys. Letters 23 (1973) 488.
- 13) T. Ikuta, E. Sugata and R. Shimizu: *Microbeam Analysis-1980*, Ed. D. B. Wittry (San Fransisco Press Inc., San Fransisco, 1980) pp. 161-4.
- 14) T. Ikuta, H. Mase and R. Shimizu: *Microbeam Analysis-1987*, Ed. R. H. Geiss, (San Fransisco Press Inc., San Fransisco, 1987) pp. 91-5.
- 15) T. Ikuta and R. Shimizu: J. Physics E 9 (1976) 721-4.
- 16) R. Shimizu, T. Ikuta: Appl. Phys. Lett. 44 (1984) 811-2.
- 17) T. Ikuta: Scanning Electron Microscopy/1985/III (SEM Inc., Chicago) pp. 973-80.
- 18) R. Shimizu, H. Mase, T. Ikuta, M. Yabumoto, Y. Matsuo and T. Nozawa: J. Appl. Phys. 58 (1985) 1606-9.
- 19) T. Ikuta, H. Mase and R. Shimizu: Rev. Sci. Instrum. 58 (1987) 1811-6.
- 20) H. Mase, R. Shimizu and T. Ikuta: Appl. Phys. Lett. 51 (1987) 376-7.

磁区、磁壁コントラスト計算用モンテカルロシミュレーションプログラム



```
file name — mcfilm.for
monte carlo electron trajectory simulation for Type-II magnetic contrast
С
č
С
               common /icon/estart, estop, theta, ntrip
              common /coor/x, y, z, ux, uy, uz, e
common /coor/x, y, z, ux, uy, uz, e
common /coot/xt, yt, zt, uxt, uyt, uzt, et
common /path/ss, deds
common /scat/omcos, omsin, cosphi, sinphi, desc
common /iden/itype
common /boun/ib, ie, iex
               common /film/zfilm
C
               pai=3.1415926
С
               call bound(1)
call adist(1)
С
    write(*,*)
write(*,*) 'enter estart(kev), estop(kev), init. agl(deg), trip num.'
read(*,*) estart, estop, theta, ntrip
the=pai*(theta/180.0)
write(*,710) estart, estop, theta, ntrip
710 format(1h, 42h estart(kev) estop(kev) init. agl(deg), 3x
1, 11htrip number/1h, 3(2x, f12.5), 4x, i10)
С
              write(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
read(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
                                          'enter beam direction from x-z plane in deg.'
0 deg. means domain wall contrast'
... 90 deg. means domain contrast'
                                        thbeam
                                           'beam direction =', thbeam,' deg.'
```

```
С
            write(*,*)
call rand(0,urn)
write(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
write(*,*)
С
            call adist(2)
call graph(1)
            posmax in micron ----
write(*,*)
write(*,*) 'enter posmax in micron'
read(*,*) posmax
write(*,*)
write(*,*) 'posmax =',posmax,' micron'
write(*,*)
posmax=4.0
C
C
С
С
            do 1000 ii=-20,20,1
bpos=posmax*float(ii)/float(20)
C
             write(*,*) 'simulation run!'
С
            write(*,*)
write(*,*) 'enter beam position from x-z plane in micron'
read(*,*) bpos
write(*,*)
write(*,*) 'beam position =',bpos,' micron'
write(*,*)
C
C
С
С
С
            ntp=0
x0=0.0
y0=bpos
z0=0.0
             ux0=sin (the) *cos (thbe)
uy0=sin (the) *sin (thbe)
uz0=cos (the)
C
            e0=estart
nscat=0
            ntrans=0
nabsob=0
C
    100 continue
             ntp=ntp+1
C
             call bound(2)
call graph(2)
С
             nst=0
            x=x0
y=y0
z=z0
ux=ux0
            ux=ux0
uy=uy0
uz=uz0
e=e0
itype=0
ib=0
ie=0
              iex=0
С
    110 continue
             nst=nst+1
С
            call graph(3)
call adist(3)
call bound(3)
С
              if(ib.eq.1) go to 200
if(ib.eq.2) go to 250
if(ie.ne.0)go to 300
C
             call adist(4)
C
             go to 110
С
    200 continue
             nscat=nscat+1
```

thbe=pai*(thbeam/180.0)

```
go to 400
250 continue
ntrans=ntrans+1
go to 400
     300 continue
     nabsob=nabsob+1
go to 400
400 continue
if (mod (ntp, 100).eq.0) write (*,*) 'trip num. = ', ntp
С
С
                call graph(3)
call graph(4)
C
                 if(ntp.lt.ntrip) go to 100
С
                call graph(5)
    write(*,770) ntrip,nscat,nabsob,ntrans
770 format(1h ,8h ntrip =,i8/1h ,8h scat =,i8/1h ,8habsorb =,i8
1/1h ,8h trans =,i8/)
write(*,*)
С
С
                call bound (4)
С
   1000 continue
С
                stop
end
                subroutine adist(ia)
С
                dimension nz (3), a (3), cont (3), betae (3, 100), comp (3, 100)
dimension sse (100), dedse (100)
dimension fmag (100)
C
               common /icon/estart, estop, theta, ntrip
common /coor/x, y, z, ux, uy, uz, e
common /coot/xt, yt, zt, uxt, uyt, uzt, et
common /path/ss, deds
common /scat/omcos, omsin, cosphi, sinphi, desc
common /iden/itype
С
                data idim1/3/, idim2/100/
С
                go to (1,2,3,4),ia
return
C
           1 continue
               write(*,*)
write(*,*) 'enter number of elements (max =',idim1,')'
read(*,*) nelm
if (nelm. le. 1) nelm=1
if (nelm. ge. idim1) nelm=idim1
write(*,*) 'number of elements = ',nelm
if (nelm. gt. 1) go to 100
С
                cont(1)=1,0
               cont(1)=1,0
write(*,*)
read(*,*) 'enter z(integer),a(g/mol)'
read(*,*) nz(1),a(1)
write(*,*)
write(*,*) '--single element---'
write(*,*) 'z=',nz(1),' a=',a(1)
go to 110
С
    100 continue
    write(*,*)
    write(*,*) 'enter z(integer), a(g/mol) and wt%'
    do 120 i2=1, nelm
    write(*,*)    phase ', i2
    read(*,*) nz(i2), a(i2), cont(i2)
120 continue
    con=0.0
    do 130 i2=1, nelm
    con=con+cont(i2)
130 continue
    write(*,*)
    do 140 i2=1, nelm
    contp=cont(i2)/con
    cont(i2)=contp
    contp=contp*100.0
    write(*, 730) i2, nz(i2), a(i2), contp
     100 continue
```

```
730 format(1h,,'phase', i2, 10x,'z=', i4, 5x,'a=', f10.5,'g/mol'
1,5x,'wt%=', f7.3,'%')
140 continue
С
                            110 continue
                                                                            write (*, *)
write (*, *) 'enter rou (mean density) g/cm3'
read (*, *) rou
write (*, *) 'rou (mean density)=', rou, 'g/cm3'
С
                                                                            write(*,*)
write(*,*) '180 deg. Domain Wall parallel to x-z plane'
write(*,*) 'enter Bx (4Pi*Ms) in Gauss unit'
read(*,*) bx
by=0.0
bz=0.0
                                                                        b2-0.0

b=0.0

bnx=1.0

bnz=0.0

b2=(bx*bx+by*by+bz*bz)

if (b2.gt.0.0) then

b=sqrt(b2)

bnx=bx/b

bny=by/b

bnz=bz/b

end if

write(*,*) '4Pi*Ms =',I

write(*,*) '(Bx,By,Bz)

write(*,*)
С
                                                                                                                                                                                                                                              4Pi∗Ms =', b, 'Gauss'
(Bx, By, Bz) =', bx, by, bz, 'Gauss'
C
                                                                                return
  c
                                                      2 continue
                                                                     continue

desc=0.0

itype=1

pai=3.1415926

hbar=1.05450e-27

clight=2.997925e+10

charge=4.80298e-10

chmksa=10.0*charge/clight

abogn=6.02252e+23

elmass=9.1091e-28

azero=5.292e-9

expn=2.71828

gamma=sqrt(expn/2.0)

dive=(estart-estop)/float(idim2)

do 200 i2=1, idim2

ekev=estart-(float(i2)-0.5)*dive

eerg=chmksa*(1.0e+3*ekev)*1.0e+7

pmom=sqrt(2.0*elmass*eerg+(eerg/clight)**2)

fc=(hbar/2.0/pmom/azero)**2

efmass=elmass+eerg/(clight)**2

fmag(i2)=(-charge*b)/(efmass*clight*velcty)

fmag(i2)=fmag(i2)*1.0e-4

tcst=0.0

do 210 i1=1,nelm

zz=float(nz(i1))

con=cont(i1)

betat=fc*(zz**(2.0/3.0))
                                                                                desc=0.0
                                                           \begin{array}{l} zz=r \left( \mathsf{oat}\left(\mathsf{nz}\left(\mathsf{n}\right)\right) \\ aa=a\left(\mathsf{i1}\right) \\ \mathsf{con=cont}\left(\mathsf{i1}\right) \\ \mathsf{betat=fc*}\left(\mathsf{zz**}\left(\mathsf{2}.0/3.0\right)\right) \\ \mathsf{cst=tcst+tcs*abogn*rou*con/aa} \\ \mathsf{comp}\left(\mathsf{i1},\mathsf{i2}\right) \\ \mathsf{cst=tcs}\left(\mathsf{i1},\mathsf{i2}\right) \\ \mathsf{cst=
```

210 continue
 sse(i2)=1.0/tcst
 sse(i2)=sse(i2)*(1.0e+4)
 dedse(i2)=dedst*2.0*pai*abogn*charge**2*charge**2*rou/eerg
 dedse(i2)=dedse(i2)*(1.0e-7/chmksa)/(1.0e+3)/(1.0e+4)
 if(nelm.eq.1) go to 200
 do 220 i1=1, nelm
 comp(i1,i2)=comp(i1,i2)/tcst
220 continue
 return return С 3 continue continue nes=ifix((estart-e)/dive)+1 if(nes.le.0) nes=1 if(nes.ge.idim2) nes=idim2 deds=dedse(nes) ss=sse (nes) 300 call rand(4, urn) if(urn.le.1.0e-10) go to 300 ss=-ss*alog(urn) С xt=x+ss*ux yt=y+ss*uy zt=z+ss*uz uxt=ux uyt=uy uzt=uz fm=fmag(nes)*ss С if(yt.lt.0.0) fm=-fm C dux=fm* (uy*bnz-uz*bny) duy=fm* (uz*bnx-ux*bnz) duz=fm* (ux*bny-uy*bnx) hss=0.5*ss xt=xt+hss*dux yt=yt+hss*duy zt=zt+hss*duz uvt=ux+duy zl=zl+Rss*duz
uxt=ux+dux
uyt=uy+duy
uzt=uz+duz
temp=sqrt(uxt*uxt+uyt*uyt+uzt*uzt)
uxt=uxt/temp
uzt=uzt/temp
et=e=ss*deds et=e-ss*deds return C 4 continue 400 ms=1 if (nelm. eq. 1) go to 420 call rand(4, urn) 410 if (urn. lt. comp(ms, nes)) go to 420 ms=ms+1 if (ms.gt.nelm) go to 400 go to 410 420 continue beta=betae(ms.nes) continue beta=betae (ms, nes) call rand(4, urn) omcos=1.0+2.0*beta*(urn/(urn-(1.0+beta))) omsin=sqrt(abs(1.0-omcos*omcos)) call rand(4, urn) phi=2.0*pai*urn cosphi=cos(phi) sinphi=sin(phi) call caxis e=e-desc return end subroutine caxis C common /coor/x, y, z, ux, uy, uz, e common /scat/omcos, omsin, cosphi, sinphi, desc С cosine=uz sine=sqrt(abs(1.0-cosine*cosine)) uz=(cosine*omcos)-(sine*omsin*cosphi) usa=ux*ux+uy*uy if(usq.lt.1.0e-10) go to 100 ud=1.0/sqrt(usq)

```
cosp=ux*ud
sinp=uy*ud
p1=sine*omcos+cosine*omsin*cosphi
p2=omsin*sinphi
ux=p1*cosp-p2*sinp
uy=p1*sinp+p2*cosp
      return
100 ux=omsin*cosphi
uy=omsin*sinphi
                      return
                      end
                      subroutine bound(ia)
C
                    common /icon/estart, estop, theta, ntrip
common /coor/x, y, z, ux, uy, uz, e
common /coot/xt, yt, zt, uxt, uyt, uzt, et
common /path/ss, deds
common /iden/itype
common /boun/ib, ie, iex
common /film/zfilm
С
                     go to (1, 2, 3, 4), ia
C
              1 continue
                    write(*,*)
write(*,*) 'monte carlo for thin film'
write(*,*) 'enter film thickness (micron) ?'
read(*,*) zfilm
write(*,*) 'film thickness(micron) =',zfilm
                      return
C
              2 continue
                      return
C
          3 continue
if(zt.lt.0.0) go to 10
if(zt.gt.zfilm) go to 40
30 continue
if(et.le.estop) go to 20
                    x=xt
y=yt
z=zt
                      ux=uxt
                      uy=uyt
                      už=užt
                     e=et
return
         return

10 continue

ib=1

dd=0.0

if (z-zt)/ss.gt.1e-5) dd=z/(z-zt)

xt=x+(xt-x)*dd

yt=y+(yt-y)*dd

zt=0.0

uxt=ux+(uxt-ux)*dd

uyt=uy+(uyt-uy)*dd

uzt=uz+(uzt-uz)*dd

et=e+(et-e)*dd

go to 30

40 continue

ib=2
     go to so

40 continue

ib=2

dd=0.0

if ((zt-z)/ss.gt.1e-5) dd=(zfilm-z)/(zt-z)

xt=x+(xt-x)*dd

yt=y+(yt-y)*dd

zt=zfilm

uxt=ux+(uxt-ux)*dd

uyt=uy+(uyt-uy)*dd

uzt=uz+(uzt-uz)*dd

et=e+(et-e)*dd

go to 30

20 continue

ib=0

ie=1

dd=(e-estop)/(e-et)

x=x+(xt-x)*dd

y=y+(yt-y)*dd

z=z+(zt-z)*dd

ux=ux+(uxt-ux)*dd

uy=uy+(uyt-uy)*dd

uz=uz+(uzt-uz)*dd
```

```
e=estop
return
C
      4 continue
         return
end
          subroutine graph(id)
C
         dummy subroutne, please write proper graphic routine ----
С
č
          common /icon/estart, estop, theta, ntrip
         common /ICon/estart, estop, theta, ntrip
common /coor/x, y, z, ux, uy, uz, e
common /coot/xt, yt, zt, uxt, uyt, uzt, et
common /path/ss, deds
common /scat/omcos, omsin, cosphi, sinphi, desc
common /iden/itype
common /boun/ib, ie, iex
common /rann/iii, jjj
         common /film/zfilm
C
          go to (1, 2, 3, 4, 5), id
С
      1 continue
          return
С
      2 continue
          return
С
      3 continue
          return
С
      4 continue
          return
С
      5 continue
          return
С
          end
         subroutine rand(i,urn)
C
         purpose ----
uniform random number (0.0 to 1.0) generation.
С
С
С
C
         usage ·
С
             .
С
                                          => setting the initial seed by
manually entered value.
         call rand(0, urn)
С
С
C
Ċ
                                          => repeat 5-times looping in random
number generation routine, then
get random number in "urn".
         call rand(5, urn)
C
C
С
         write(*,*) urn
С
Ċ
Ċ
C
С
         arguments -
С
                  ( in, integer) := 0 — setting the initial seed by
manually entered value.
> 0 — implies "i"-times looping
          i.
C
C
Ċ
                                                          regenarate previous random
number. (Should not used !)
Ċ
                                              < 0
C
С
С
                               float) : generated uniform random number,
restricted 0.0 to 1.0.
         urn (out,
С
Ċ
Ċ
С
          integer*2 jyr, jmon, jday, jhr, jmin, jsec, j100th
data ich/0/, idum/0/
С
          iloop=i
С
          if(iloop.gt.0) go to 10
if(iloop.lt.0) go to 20
C
          idum=47123859
```

C	1	write(*,*) continue write(*,*) 'enter 8 random numbers' read(*,*) idum if(idum.eq.0) go to 1 if(idum.ge.0) idum=-idum iloop=mod(iabs(idum),1000)+1 go to 11
ĉ	10	continue if(ich.ne.0) go to 11
с -		call getdat(jyr, jmon, jday) call gettim(jhr, jmin, jsec, j100th)
č		idum=jsec*1000000+jmin*10000+jhr*100+jday
с - с с с с		iday=jday ihr=jhr imin=jmin isec=jsec i100th=j100th idum=isec*1000000+imin*10000+ihr*100+iday
		if(idum.ge.0) idum=-idum iloop=mod(iabs(idum),1000)+1
	11	continue
		ich=-1
	15	do 15 k=1,iloop urn=ran2(idum) continue
	20	continue
		return end
		FUNCTION ran2(idum)
C C		この部分については、idum をシードとして 0−1 区間の一様乱数を発生させる 関数を記述すること
		RETURN

ke i URN End

磁区SEMによる電磁鋼板観察

籔本 政男 (新日鐵住金株式会社)

はじめに

電磁鋼板には、変圧器やモータなど電気-磁気エネルギー変換を応用した電気機器の鉄 心材料として、地球温暖化防止に貢献する省エネルギー化に資する優れた磁気特性が 求められている。鉄心材料では、商用周波数から中間周波数域での交流磁化に伴う磁気 特性が重要である。他の磁性材料と同様に、電磁鋼板の磁気特性は鋼板内部の磁区構 造に基づいており、実際に使用される製品状態での電磁鋼板の磁区を静的及び動的に 観察して理解することが、磁気特性に優れた電磁鋼板を開発するため基礎となる。

省エネルギーの鉄心材料として、交流で磁束を通したときに単位時間に熱として失われる エネルギー、即ち鉄損が低いことが求められる。鉄損は渦電流損とヒステリシス損に大別さ れ、電磁鋼板は渦電流損失を下げるためにSi等の合金成分を加えて電気抵抗を高め、ヒ ステリシス損失を下げるために高純度とした鉄合金であり、鉄鋼材料の中では唯一の磁気 特性を評価する機能材料である。鉄損は電磁鋼板のグレードを区分する指標として、IEC 規格やJISで規定されている。磁気物性的には、鉄損は交流で磁化されたとき磁束密度と 磁界の強さが描くヒステリシスループの面積に相当する1サイクル分のエネルギー損を周 波数倍した値であり、ヒステリシスの要因となる動的な磁区の観察を行うことが、より高性能 の電磁鋼板を開発するためのヒントとなる。

電磁鋼板には、主に変圧器鉄心に使用される方向性電磁鋼板と、主にモータや発電機の鉄心に用いられる無方向性電磁鋼板とに大きく分けられる。それぞれの鉄心は電磁鋼板を積層して用いられ、鉄心全体に渦電流が流れて損失が増えることを防ぐため、電磁鋼板製品の表面には1-2µm厚さの絶縁皮膜が施されている。さらに、方向性電磁鋼板では鉄損を低減するために皮膜は鋼板に張力を付与する機能も持っており、皮膜を除去すると磁気特性が大きく劣化する。このため、皮膜を除去せずに製品の状態での皮膜下の磁区を観察することが必要である。皮膜下の磁区を静的に観察することは磁性粉末法(ビッター法)でも可能であるが、皮膜下の磁区を動的に観察するためには、ここで紹介する200kVの加速電圧の電子銃を備えた「磁区SEM」が必要となる。

磁区をただ観察するだけでは、より高性能の電磁鋼板を開発するヒントを得ることは難しい。 改善しようとする磁気特性と結び付けて、静的な磁区と動的な磁区を種々の磁区観察法 を駆使して観察することが必要である。このため、先ず電磁鋼板の磁区構造の観察法に ついて述べる。

1. 電磁鋼板の磁区観察法と磁区構造

(1) 電磁鋼板の磁区観察法

方向性電磁鋼板と無方向性電磁鋼板では、合金成分、鋼板を構成する結晶粒の結晶方 位、粒径、皮膜の機能などが異なり、磁区構造が大きく異なる。図1にビッター法で観察し た方向性電磁鋼板の磁区を、図2に磁区SEMで観察した無方向性電磁鋼板の磁区の例 を示す。方向性電磁鋼板ではストライプ状の180°磁区が圧延方向(写真の横方向)を磁 化方向として並び、結晶粒毎にその方向と磁区幅が異なっている。また、無方向性電磁 鋼板の磁区は方向性電磁鋼板に比べ約2桁細かく、かつ構造も複雑である。



図1 方向性電磁鋼板の磁区(ビッター法)



図2 無方向性電磁鋼板の磁区(磁区SEM)

① ビッター磁区観察法

方向性電磁鋼板表面の皮膜の上から、多くの結晶粒を含む広い範囲の磁区を静的に 観察する目的に適している。

鋼板表面に磁区観察用の磁性コロイド液を載せて垂直磁場を印加すると、鋼板表面の 漏えい磁場に磁性コロイド粒子が凝集して図1にように磁区模様が現れる。磁区コント ラストが生じるためには、磁化方向の<001>軸が鋼板表面から傾き鋼板面に垂直な磁 化成分を持つことが必要である。この場合に、外部磁場と同じ方向の垂直磁化成分を 持つ磁区表面からの漏えい磁場が増え磁性コロイド粒子が凝縮し、隣接する反対方向 の垂直磁化成分を持つ磁区表面には磁性コロイド粒子が疎となる。磁区コントラストを 上げるために鋼板表面を白くペイントするか白い樹脂薄膜を貼ることが多い。安定な磁 性コロイド液を用いる場合には、垂直磁場を除去するとともに磁性コロイドが再び分散 し磁区模様は不明瞭となる。磁性コロイドが鋼板表面の漏洩磁場に引きつけられてい る状態で上澄み液を除去するか、適度に不安定化した磁性コロイドを用いると、磁場を 除去した後に鋼板表面に磁区構造を残すことが可能である。図1は、このようにして鋼 板表面に残した磁区模様である。磁性コロイドの色調が薄く磁性コントラストが良くない 場合には、スキャナーで読取ることでコントラストが改善する場合がある。

ビッター磁区観察法の長所は、垂直磁場を印加する磁極面積の大きな電磁石を準備 することにより、たとえば100mm×300mmといった広い面積の磁区模様を観察可能なる ことである。また、図1にも見られるように、同じ結晶粒の中で180°磁区の長手方向で コントラストが消え長手方向両側でコントラストが反転する個所を探すことで、結晶方位 の<001>軸が鋼板表面と平行となる個所を把握できることである。これは方向性電磁鋼 板がコイル状で結晶成長させた後に平坦化しているため、同じ結晶粒内でも圧延方向 に沿って<001>軸がしているためである。

② Kerr効果磁区観察法

方向性電磁鋼板と無方向性電磁鋼板の磁区観察に用いられるが、反射光の偏光面の 回転を検出するため鋼板表面を鏡面とする必要があり、観察された磁区模様は皮膜が ある場合とは異なることに注意することが必要である。

しかし、方向性電磁鋼板に対しては、磁化に伴う磁区の変化をリアルタイムで視覚的に 観察できる長所があり、180°磁区とランセット磁区などの付属的な磁区との相互関係 を理解する上で、有用な磁区観察法である。 無方向性電磁鋼板に対しては、特殊な偏光顕微鏡を用いることで微細な結晶粒の表面の磁区模様を観察できる。しかし、方向性電磁鋼板の場合と異なり結晶方位はラン ダムであり、〈001〉軸が鋼板表面に対して大きな角度をもつ結晶粒では、鋼板表面に 現れる磁極による静磁エネルギーを低減するように表面に細かな還流磁区が形成され、 観察された磁区模様がより内部の磁区構造と一致しないことに注意が必要である。

Kerr効果で磁区観察するためには試料表面が平滑な鏡面である必要があり、Kerr効果による磁区観察は試料作製に手間がかかる。鋼板表面の皮膜を取り除き鏡面研磨した後、研磨で入った鋼板表面の歪みを水素中で焼鈍して取り除いた後、表面にコントラストを改善するために適度な厚みのZnS等のコーティングを施す必要がある。

③ SEMによる磁区観察法

鋼板面に斜めから電子ビームを入射し、鋼板内で散乱して表面に出てくる電子を検出 する。一般的なSEMの低加速電圧電子銃を用いて観察するものと、TEM用の高加速 電圧電子銃を用いるものとがある。磁区SEMは後者である。

低加速電圧の電子銃を用いた場合には、鋼板表面の凹凸によるコントラストを避けるため、試料はKerr効果磁区観察法の場合と同様の鏡面加工を施す必要がある。

高加速電圧の電子銃を用いた場合には、電磁鋼板の皮膜下の磁区構造を観察できる ことが特徴である。磁区SEMは、さらに動的な磁区観察機能を付加し、ビッター法に匹 敵する広い面積の磁区構造を観察可能としている。一方、高エネルギーの電子ビーム が皮膜下の鋼板内まで侵入し散乱して電子が鋼板表面まで到達する間に位置分解能 が低下するため、高倍率での磁区観察には不向きである。

(2) 方向性電磁鋼板の磁区構造

方向性電磁鋼板は各結晶粒の結晶方位を{110}<001>にほぼ揃えた特殊な鋼板であり、その磁区構造も図1に示したように、他の磁性材料と際だって異なっている。

電磁鋼板は、主に変圧器の鉄心に使用され、変圧器の低損失・低騒音化のニーズに伴い、鉄損及び磁歪に優れたより高性能な鋼板の開発が続けられている。高性能な方向性 電磁鋼板の一般的な結晶粒径は十~数十mmであり、各結晶粒は板厚を貫通している。 各結晶粒の磁化方向の<001>軸は圧延方向から数度以内に分布している。一方、圧延方 向と直角の方向は磁化困難な<110>軸となり、鋼板の磁気異方向性が極めて大きい。この ため、方向性電磁鋼板は一般的に、圧延方向が磁化方向となるように磁気回路を組む。

方向性電磁鋼板は多結晶体であり、各結晶粒の結晶方位は $\{110\}<001>$ からほぼ数度以 内で分布している。<001>軸の圧延方向からの偏りを α 、 β 及び γ の3つの角度で表すこ とが一般的であり、<001>軸の圧延方向からの変位を鋼板面に垂直な方向を軸とした回転 で表したものが α 角、鋼板面内の圧延方向と垂直な方向を軸とした回転で表したものが β 角、圧延方向を軸とした回転で表したものが γ 角である。

方向性電磁鋼板の磁区構造は、<001>軸を磁化方向とする180°磁区が圧延方向に伸び、 180度磁壁が板厚を貫通したシンプルな構造が基本である。広い面積の磁区構造を観察 する方法としては、図1に示したビッター法が適している。各結晶粒の180°磁区の向きと 圧延方向との角度はα角にほぼ等しく、磁区幅はβ角に大きく依存している。

180°磁区の他の磁区構造を詳細に観察するためには、Kerr効果あるいはSEMによる磁 区観察法が適している。β角がゼロの場合には磁化方向が鋼板表面と平行となり、鋼板 表面には磁極が現れないため、磁区構造はストライプ状の180°磁区のみとなるが、β角 が小さな値の場合には、180°磁区の表面に磁極が現れるため、鋼板内に90°磁区を伴うランセット磁区が形成される。図3に、Kerr効果による磁区観察例を示す。



(by Kerr effect) 0.5 mm

図3 小さなβ角を持つ結晶粒の磁区構造



図4 ランセット磁区を伴う還流磁区構造の模式図

図3では、磁化方向の向きにより白と黒のコントラストとなるストライプ状の180°磁区の中に、 ランセット磁区と呼ばれる細い三角状の磁区が分布していることが観察されている。ランセ ット磁区は鋼板表面に浮いた180°磁区であり、磁化方向が180°磁区とは反対であるた め、コントラストが反転している。ランセット磁区は、鋼板内部で板厚方向に伸びた90°磁 区とつながり、裏面のランセット磁区とつながっている。図4に、その内部の磁区構造の模 式図を示す。90°磁区の磁化方向は板厚方向であり、<001>軸の傾きにより鋼板表面と裏 面に発生した異なる磁極を短絡する働きをするため、還流磁区と呼ばれる。還流磁区の 構造を直接観察することは困難であるが、理論的な計算により構造が推定されている。

(3) 方向性電磁鋼板の磁気特性と磁区構造

前述したように、方向性電磁鋼板には交流で磁束を流したときに発生する鉄損をより低く 抑えることが求められる。鋼板に流れる磁束は、磁区観察で白と黒のコントラストの互いに 磁化が反対向きの180°磁区の、白の磁区と黒の磁区の断面積の差に飽和磁束密度を かけた値に等しい。このため、鋼板に磁界が印加されると180°磁壁が磁界の向きに近い 磁化の向きの180°磁区の幅が広がるように移動することにより磁束が流れる。180°磁壁 が動いた部分では磁化の向きが反転するため、局所的に磁化を妨げるように渦電流が流 れエネルギー損失を発生する。この損失は磁区構造を考慮しない場合の古典的な渦電 流損と区別して、異常渦電流損に分類される。この異常渦電流損は磁壁の動きの二乗に 比例して大きくなるため、180°磁区の幅を狭くして磁壁の平均移動速度を低くすることが 異常渦電流損を低減することになる。

還流磁区は180°磁壁の動きを妨げることになるため、還流磁区を形成させないことが方 向性電磁鋼板の磁気特性を向上させる。180°磁壁の間隔及び還流磁区の形成には、 β角により180°磁区の表裏面に現れる磁極に伴う静磁エネルギーが関与している。 180°磁区の表面磁極は180°磁壁を挟んで隣接する磁区で反転するため、180°磁壁 の近傍では静磁エネルギーが低い。また、ランセット磁区の表面磁極は180磁区の表面磁 極と反転しているため、ランセット磁区の周りでは静磁エネルギーが低い。

このため、ランセット磁区は180°磁壁の近傍では不安定であり、磁束が流れて180°磁壁が移動するとランセットは180°磁壁から離れるように移動し縮小し、180°磁壁間隔がさら

に狭くなると消失する。反対に180°磁区が広くなるとランセット磁区が増える。このような 挙動はKerr効果で観察することができる。ランセット磁区の発生消滅には鋼板内部の90° 磁区の磁壁エネルギーの変化と90°磁区の断面積変化に伴う局所の渦電流によるエネ ルギー損失が伴うため、ランセット磁区が存在すると180°磁壁の移動を妨げる。すなわち 鋼板の透磁率が劣化する。さらに鋼板表面に凹凸がある場合には、ランセット磁区が凹凸 部に補足され、180°磁壁の可逆移動を妨げる。これらの現象が鋼板のヒステリシス損失 を増加させることにつながる。

方向性電磁鋼板に求められる磁気特性として磁歪があり、鋼板内部の90°磁区の存在に 依っている。方向性電磁鋼板の磁歪は、変圧器の騒音の主な材料要因のとして注目され、 低騒音変圧器のニーズとともに低磁歪の材料が求められるようになった。

方向性電磁鋼板は3wt%Si-Fe合金が基本組成であり、磁化方向に伸びている。鋼板の伸 び率を示すのが磁歪定数であり、3wt%Si-Feの<001>方向では23×10⁻⁶である。180[°] 磁 区は磁化の向きに依らず同じ方向に伸びているため、磁区構造が圧延方向に伸びた 180[°] 磁区のみで構成されている場合には、交流磁化により180[°] 磁壁が移動しても、磁 歪はゼロとなる。90[°] 磁区が存在している場合には、磁化方向が異なるため、90[°] 磁区の 体積の分だけ圧延方向の伸びは短くなる。このため、鉄心振動に関与する方向性電磁鋼 板の磁歪は、90[°] 磁区の体積が交流磁化に伴い変化するために生じる伸びの変化分で あり、低磁歪特性の方向性電磁鋼板では1.9Tでも磁歪は10⁻⁶⁷以下と極めて小さくなる。

図5に、方向性電磁鋼板の磁束密度と磁歪のバタフライカーブを示す。バタフライカーブ を理解するためにはランセット磁区の交流磁化での挙動の理解が不可欠である。



Flux Density (T)

磁束密度がゼロの場合は、磁化の向きが異なる180°磁区の体積が同じである。この状態 を起点として磁束密度が増える過程では鋼板の長さが縮む。これは磁界により180°磁壁 が圧力を受けて磁界と同じ向きの磁化の180°磁区幅が広くなるが、ランセット磁区の 180°磁壁も同様に圧力を受けてランセット磁区の増加が抑制され、また、反対向きの 180°磁区の幅が狭くなることによりランセット磁区が縮小する。これに伴いランセット磁区 下の90°磁区の断面積が縮小して鋼板が縮む。さらに磁界強度が上がり、磁化回転が生 じる領域になると、α角により圧延方向から傾いた磁化の向きが圧延方向に回転するため に鋼板が伸びる方向に転じる。磁束密度がピークを過ぎて減少する過程では、磁界強度 の低下に伴い磁化回転が戻り鋼板が可逆的に縮み、さらに磁界の向きが反転することに より、磁区幅が広がっている180°磁区の中のランセット磁区が一転して拡大する。これに 伴いランセット磁区の下の90°磁区の断面積が急速に拡大して、磁束密度が増加する過 程よりもさらに鋼板が縮むと考えられる。

方向性電磁鋼板の磁歪特性を改善するためにも、ランセット磁区を減少させることが望ましい。ランセット磁区を減少させる方法としては、方向性電磁鋼板の結晶方位を改善して

図5 方向性電磁鋼板の磁歪バタフライカーブの例(50Hz、最大磁束密度 1.9T)

β角の大きな結晶粒をなくすことと、磁歪の逆現象を利用して、鋼板に張力をかけることで 90°磁区が存在しにくくすることが有効である。Kerr効果磁区観察で試料の圧延方向に 張力を加えると、ランセット磁区が減少することが確認できる。また、試料に圧縮応力を加 えるとランセット磁区が増加することも確認できる。このため、方向性電磁鋼板の皮膜には 鋼板に張力を加える機能が与えられている。さらに鋼板内部に圧縮応力が残らないように 慎重に焼鈍処理が施されている。

皮膜に磁気特性を改善する機能があるため、方向性電磁鋼板の皮膜を除去し加工を加 えると、製品本来とは異なる磁区が観察される。このため、皮膜の付いた製品状態での磁 区観察が必要となる。

(4) 無方向性電磁鋼板の磁区構造

無方向性電磁鋼板は板厚よりも小さな結晶粒からなる多結晶体であり、モータや発電機の鉄心として特定の方向に限らない磁界中で使用されるため、鋼板面内で磁気異方性を 持たないように各結晶粒の結晶方位がランダムであることが望ましい。このため、図2に示 したように磁区構造は方向性電磁鋼板に比べ、細かく多様となる。

しかし、高性能の無方向性電磁鋼板は鋼板面内での透磁率と鉄損特性を良くするために、 鋼板面内に磁化容易な<001>軸が集積するように制御されている。このため、高性能な無 方向性電磁鋼板の表面にはストライプ状の180°磁区が多く観察される。一方で、磁区は 方向性電磁鋼板の場合と異なり、磁区観察の前に鋼板に加わった磁界の向きにより異な ることに注意する必要がある。また、鋼板の板厚方向には複数の結晶粒が存在することか ら、鋼板表面で観察された磁区模様が必ずしも鋼板内部の磁区構造と同じではないこと に注意する必要がある。さらに、Kerr効果磁区観察法の項目で述べたように、<001>軸が 鋼板表面に対して大きな角度をもつ結晶粒では、鋼板表面に細かな還流磁区が形成さ れることから、同じ結晶粒の内部の磁区構造と一致しない場合があることにも注意する必 要がある。

このため、無方向性電磁鋼板の磁区構造を磁気特性と結び付けることは、方向性電磁鋼板に比べ困難である。同じ鋼板を用いた場合の加工による影響などを調べる用途などに限定して用いることが好ましい。

2. 磁区SEMによる磁区観察

磁区SEMは、方向性電磁鋼板の皮膜下の磁区を、磁気特性を測定する試験片と同じ広い面積について観察し、商用周波数での動的観察を可能とするために開発された。

SEMによるType-II磁区コントラストの形成メカニズム及びラインサンプリング法を用いたストロボSEMによる商用周波数での動的磁区観察法については、別稿に生田先生の解説があるのでここでは省略する。

皮膜下の磁区を観察するために、200kVの加速電圧のTEM用の電子銃を採用し、広い面積の鋼板表面の磁区を観察可能とする大きな真空試料室を備えた。試料は電子銃の軸に対し45度に傾斜させ、鋼板内で散乱して表面に出てきた電子を大面積のシンチレータとライトガイド、フォトマルで構成された検出子で検出した。試料面で反射した電子には試料表面での反射成分が多く、磁区コントラストが試料表面の凹凸コントラストの影響を強く受けているため、検出子は電子ビームの入射点に対し少し上方に配置してこの影響を避けた。試料表面で反射した電子は皮膜下の鋼板内部で反射した電子よりも高いエネルギーを持つため、シンチレータの全面に、適切な厚さのアルミフォイルのフィルターを置くこと

でハレーションの影響を防止した。

試料面は入射する電子ビームに対し45度に傾斜し、電子ビームを広い面積で2次元走査 するため、検出子に対する視野角の変化から生じる明るさ分布を平たん化し磁区コントラ ストを明瞭にするため、出力信号レベルのバックグラウンド補正を行った。

電子ビームの走査で観察する試料の範囲は最大で20mm×20mmであり。さらに真空試料 室の中で試料を載せたステージの移動と組み合わせることにより、60mm×300mmの範囲 の磁区を観察可能とした。図6に、真空試料室に入れた300mm×300mmのモデルトランス のヨーク部分の磁区観察例を示す。この例ではU脚及びV脚のみを励磁してW脚には磁 束が流れない状態として、数値シミュレーションで予想されていたV脚とW脚の間のヨーク でのU字型にターンする磁束の流れを磁区のコントラストで実証したものである。



図6磁区SEMによるモデルトランスのU-V脚を励磁した状態のヨークの磁区観察例

図7は、表面に1-2μmの絶縁皮膜を有する無方向性電磁鋼板の磁区を、電子ビームの 加速電圧を変えて観察した例であるが、皮膜下の磁区を観察するためには、140KV以上 の高い加速電圧が必要であることを示している。



(a) 120kV

(b) 140kV

(c) 200kV

図7 電子ビームの加速電圧を変えて観察した絶縁皮膜付き無方向性電磁鋼板の磁区

(1)方向性電磁鋼板の磁区SEMによる動的磁区観察

ラインサンプリング法により、商用周波数で交流磁化されている状態の方向性電磁鋼板の 皮膜下の磁区を観察可能とした。電子ビームをX方向に励磁周波数の16倍の周波数で走 査して励磁周波数を同期させることにより、8位相分の磁区像を同時に取得可能とした。電 子ビームの走査中でも交流磁化が繰り返されるため、各画像のX軸の左端と右端ではπ /8の位相差がありY軸には同じ励磁位相ではあるが異なる時間のX軸画像が配置されて いることに注意する必要がある。図8に、方向性電磁鋼板のHI-B材とレーザ磁区制御材の ラインサンプリング法での1位相分の磁区模様を示す。それぞれ9個の画像をつなぎ合わ せている。また、図9に図8の一つの画像に対する8位相の磁区模様を示す。



_____10mm

(a) 高透磁率方向性電磁鋼板

(b)レーザ磁区制御材

図8 方向性電磁鋼板の50Hz、1.5T励磁下の1位相分の磁区観察例



(a) 高透磁率方向性電磁鋼板

(b)レーザ磁区制御材

図9 方向性電磁鋼板の50Hz、1.5T励磁下の8位相分の動的磁区観察例

図8、図9から、HI-B材では各結晶粒の中で磁区幅及び磁壁の動きにばらつきがあり粗大 な結晶粒の中で磁壁が一体として動くのに対し、磁区制御材では、磁区幅が狭くより均等 となり、同じ結晶粒の中でレーザ処理により分断された磁区が、それぞれ独立して、全体としてより均等に動いていることが判る。磁区制御は一般的には磁区細分化とも称され、磁 区幅が細かくなる効果が良く知られているが、磁区の長さも細分化され、あたかも「阿弥陀 くじ」で横棒を増やすのと同様に、鋼板内での磁束密度の分布をより平坦化することで渦 電流損のみならずヒステリシス損の改善に効果を及ぼしていることが判る。鉄損低減効果 を最大限に発揮させるためには、レーザ処理を最適な条件とする必要があることは言うま でもない。

(2) 無方向性電磁鋼板の磁区SEMによる観察

前述したように、無方向性電磁鋼板の表面の磁区と内部の磁区は一般的に異なることが あることに注意する必要がある。図10は、皮膜のない無方向性電磁鋼板の磁区を電子ビ ームの加速電圧を変えて観察した例を示す。より高い加速電圧の電子ビームは表面から 鋼板内のより深い部分に浸透するため、より深い部分の磁区の情報を示す。





80kVの加速電圧で観察した無方向性電磁鋼板の磁区では結晶粒の表面に細かな磁区 が観察されるが、180kV及び200kVの加速電圧で観察した場合にはより粗い磁区が観察 されている。80kVで観察された磁区は、Kerr効果で観察される磁区と同様に表面に浮い た還流磁区と考えられる。無方向性電磁鋼板でも高い加速電圧の電子ビームを用いる磁 区SEMによる磁区観察が必要であることが判る。

3. まとめ

電磁鋼板の磁気特性を改善するヒントを磁区の観察により見出すためには、目的にあっ た観察法を選択することが必要である。電磁鋼板の磁区を観察する一般的な方法には、 ①ビッター磁区観察法、②Kerr効果磁区観察法、③SEMによる磁区観察法がある。その 中でも、方向性電磁鋼板に対しては、表面に絶縁皮膜が付いた状態での皮膜下の磁区を 動的に観察することが必要であり、200kVの加速電圧の電子銃を備えた磁区SEMを用いる ことが必要である。一方、無方向性電磁鋼板の磁区を観察する場合には、表面に現れる 磁区と内部の磁区が異なる場合があることに注意する必要がある。この場合にも、加速 電圧の高い電子ビームを用いる磁区SEMによる磁区観察により内部の磁区を観察するこ とが可能となる。

参考文献:

- R. Shimizu, H. Mase, T. Ikuta, M. Yabumoto, Y. Matsuo and T. Nozawa, Application of line-sampling multiframe stroboscopy for dynamic observation of magnetic domain in Si steels, J. Appl. Phys. 58 (1985) 1606-1609.
- N. Takahashi, Y. Ushigami, M. Yabumoto, Y. Suga, N. Kobayashi, N. Nakayama and T. Nozawa, Production of very low core loss grain-oriented silicon steel, IEEE Trans. Magn. MAG-22 (1986) 490-495.
- M. Yabumoto, M. Matsuo, H. Kobayashi and T. Nozawa, relation between dynamic domain wall movement and crystal orientation in sdvanced grain-oriented silicon steel, J. Appl, Phys. 64 (1988) 5364-5366.
- S. Arai, M. Mizokami and M. Yabumoto, The magnetic properties of doubly oriented 3% Si-Fe and its application, J. Appl. Phys. 67 (1990) 5577-5579.
- 5) H. Endo, S. Hayano, M. Fujikura, H. Mogi, C. Kaido and Y. Saito, Magnetic domain dynamics visualization, International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics 15 (2001/2002) 409-416.

X線磁気顕微鏡

公益財団法人高輝度光科学研究センター 鈴木基寛

1. はじめに

X線吸収分光による磁性体の研究が始まったのは、今からおよそ 30 年前の 1980 年代 であった。1980 年代後半から 1990 年代の初めにかけて、円偏光X線の吸収強度が偏 光の回転方向 (ヘリシティ)によって異なる現象、X線磁気円二色性 (X-ray magnetic circular dichroism: XMCD) が発見された[1],[2]。このことが大きな契機となり、 1990 年代半ばには磁性研究の有力な実験手法として確立された。X線の内殻吸収によ る元素選択性は XMCD の大きな特徴である。加えて、X線の波長は可視光の 1/1000 と 短いため、原理的にはオングストローム (0.1 nm) 分解能の超高分解能顕微測定が行 えるものと期待される。円偏光したX線を集光素子で試料上の小さなスポットに集め ることで、顕微磁気測定を行うという試みが、1990 年代の半ばから始まった。最初に 開発され、成功したのは軟X線領域での顕微鏡であった[3],[4]。この辺りの状況は、 篭島先生の記事を参照いただきたい。より波長の短い硬X線では、原理的には軟X線 よりも高い空間分解能が期待できるものの、高精度な集光素子の開発が困難であった ことから、2000 年代になって本格的な顕微測定が行われるようになった。本稿では、 SPring-8 における硬X線磁気顕微鏡の開発の歩みを記す。

2. X線磁気顕微鏡開発初期: ゾーンプレートによる試行(2001年~2003年)

2.1 最初の試み

SPring-8 における硬 X 線磁気顕微鏡の最初の試みは、2001 年に姫路工業大学(現 兵庫県立大)の篭島 靖先生らによって行われた。1997 年 10 月の BL39XU の供用開始から3 年ほどが経過していた。ダイヤモンド移相子の立ち上げや磁気散乱吸収装置の整備がひと通り完了し、高精度な XMCD のデータが定常的に得られるようになっていた[5],[6]。次なる開発テーマとして、硬 X 線領域での走査型磁気顕微鏡が、X 線顕微鏡開発のパイオニア[3],[7]である篭島先生から提案された。研究グループには、早川慎二郎(広大)、小泉昭久(姫工大)、高垣昌史(姫工大、現 JASRI)、河村直己(理研現 JASRI)の各氏と筆者が参加した。

2001 年当時の海外情勢はというと、軟 X 線領域における透過結像型の磁気顕微鏡が注 目を集めていた。ドイツ BESSY の P. Fischer のグループが開発した装置で、その後 アメリカ バークレーの Advanced Light Source (ALS) にも設置された[4],[8],[9]。 この結像型磁気顕微鏡は集光素子としてフレネルゾーンプレート (Fresnel Zone Plate: FZP) [10],[11] を用いており、空間分解能は当時においてすでに、25 nm を 達成していた。2000 年に赤穂で行われた XAFS 国際会議での、Fischer の小気味良い 講演が印象に残っている [9]。硬 X 線領域では、アメリカのアルゴンヌ国立研究所の

1

Advanced Photon Source (APS) において、やはり FZP を用いた空間分解能 4 ミクロ ン程度での走査型 XMCD 磁気顕微鏡が開発されたところであった[12]。

我々の最初の取り組みでも、集光素子として FZP を用いた。当時は集光ミラーの開発 よりも FZP の開発が先行しており、より小さな集光ビームを得るにはミラーよりも FZP の方が有利という認識であった。ただし、スペクトロスコピーに用いる場合には X線の波長によって焦点距離(すなわち FZP から集光ビームまでの距離)が変化する ため、使いにくい面もある。

実験は、SPring-8のBL39XUビームラインでの共同利用実験課題として行った。図1 に、後述する他のビームラインBL47XUでのFZPを用いたXMCD顕微鏡の光学系を示す。 BL39XUでも基本的に同じ光学系を用いた。アンジュレータ光源からの直線偏光したX 線をシリコンの二結晶分光器で単色化し、つづいてダイヤモンド移相子[13]を用いて 円偏光を生成する。ここまでをビームラインの既存の光学系によって行う。このビー ムを試料上に集光することで走査型の顕微鏡ができあがる。実験ハッチ内にFZPと調 整用の精密ステージ、試料位置走査のための二次元ステージ、およびFZP 調整用の CCD カメラを持ち込んで、集光光学系を組み上げた。FZP は、直径 100 µm、最外輪帯幅 250 nm のものを用いた。BL24XU 兵庫県ビームラインにおいて、この FZP により直径 0.8 µm の集光ビームを形成できることを前もって確認していた。観察試料として、市販の磁 性ガーネット単結晶(HoTbBi)₃Fe₅0₁₂を用いた。おもな磁性元素として Ho と Fe が含 まれており、これらの元素の吸収端での XMCD コントラスを利用して磁区像を得るこ とができると考えた。事前のビッター法での観察では、大きさ約 10 µm のバブル状磁 区構造が確認された。

Ho L₂ 吸収端のエネルギーである 8.92 keV において、半値幅 2.3(H) × 2.2(V) µm の 円偏光集光ビームの形成に成功した。また、Fe K 吸収端である 7.11 keV においても 1.3 (H) × 2.1(V) µm の集光が行えた。このビームを用いて、目的の磁区構造と同程 度の間隔をもつ Cu#2000 メッシュの走査型顕微像を取得できることを確認した。XMCD イメージングは、Si(Li) 半導体検出器 (SSD) を用いた蛍光法で行った。試料位置を 20µm×20µm の範囲で 1µm のステップで二次元走査しながら、左右円偏光に対する蛍光 強度の差分を測定した。測定時間は Ho で 5 秒/点、Fe で 20 秒/点の積算を行った。し かし、誤差範囲内で有意な XMCD 像を取得することはできなかった。集光ビームを作 るところまでは順調であったが、XMCD イメージングには成功しなかった。

XMCD 像が得られなかった原因として考えられるのは、第一に統計精度が不足していた ことが挙げられる。硬 X線領域に位置する 3d 遷移金属元素の K吸収端での XMCD 信号 強度は 0.1%のオーダーであり、蛍光法で十分な光子統計を得られるだけの計数に達し ていなかった。統計を稼ぐには単純には長い測定時間をかければよいのだが、装置の
安定性やビームタイムの制約のために限界がある。したがって、光源の高輝度化や、 集光素子の効率化(FZPはミラーと比べて開口が小さく、透過率も低い。すなわち効 率が低い)、検出器の大面積化等が今後の目標として認識された。

次に考えられるのは、試験用の観察試料として、ガーネット結晶の磁区構造が適切だったかどうかである。測定に用いた鉄ガーネット単結晶では、ビッター法によりバブル状磁区構造を持つことを確認した。しかし、個々のバブル磁区と思われる構造は10 µm サイズだったが、その内部に微細構造が観察された。この微細な磁区構造を分解するために、2 µm のビームサイズでは不十分だった可能性がある。サブミクロンの分解能のX線ビームの必要性がこの段階から議論され始めた。同じ FZP を用いたにも関わらず BL24XU での結果よりも大きいビームサイズしか得られなかったのは、当時のBL39XU のモノクロメータがピンポスト結晶冷却[14],[15]という方式を採用しており、わずかに加工歪が残存する分光結晶を用いたためと推測される。分光結晶によってビームに不規則な角度分布がつき、FZP が理想的に照明されていなかったと考えられる。 分光結晶の問題は、その後の液体窒素冷却のモノクロメータの導入[16],[17]によって解決されることとなる。

2. 2 集光ビームによる XMCD スペクトル測定に成功

BL39XU での共同利用実験とは別に、JASRI の高度利用技術開発課題として、BL47XU での硬X線磁気顕微鏡の開発を鈴木芳生氏(JASRI)らとともに行っていた[18]。BL47XU ではFZPを用いたマイクロビーム実験が定常的に行われており、その光学系にダイヤ モンド移相子装置を持ちこみ、硬X線顕微鏡装置を構築した。ちょうど、BL39XUでの 実験と反対の考え方であった。図1に XMCD 顕微鏡の光学系を示す。用いた FZP は電 子線描画で作成した最外線幅 250 nm の Ta 製の素子であり、測定を行った Fe K 吸収 端(7.1 keV) における焦点距離は 142 nm 、回折効率は 22%程度であった。移相子 には、方位 111、厚さ 0.47 nm の人工ダイヤモンド結晶を 220 ラウエ配置で用いた。

まず行ったのは、円偏光を作るための移相子を光学系に挿入しても、FZPの集光性能が 損なわれないことを確かめることであった。図2に集光ビーム形状の測定結果を示す。 移相子を光軸上に入れない場合(直線偏光)と、入れた場合(円偏光)で集光ビーム 形状や集光サイズに変化は見られなかった。どちらの場合にもFZPの最外輪帯幅で決 まる回折限界の集光ビーム(半値幅 250 nm)が得られており、移相子による集光特性 への影響はないことが確認された。このことから、X線の破面は移相子を透過しても ほとんど乱れておらず、空間コヒーレンスが保存されていると言える。この移相子透 過光における空間コヒーレンスの保存は、後にスリットからのフラウンホーファー回 折の観測によっても確かめられた[19]。BL47XUではいち早く液体窒素冷却のモノクロ メータが導入されており[16]、集光素子によって小さなビームを得るのに有利であっ た。 この 250 nm の集光ビームを用いて、純鉄の XMCD 測定を試みた。試料は厚さ 5 µm の 鉄箔を用いた。永久磁石の磁気回路を用いた試料ホルダー [圓山 裕先生 岡山大(現 広島大)自作] に取り付けることで、フォイルの面内方向に飽和磁化させた。X 線を 試料面に対して 45 度の角度で入射することで、面内磁化による XMCD を測定した。XMCD 測定は、イオンチェンバー検出器を用いた透過法により行った。透過法では、蛍光法 と比べて検出に用いる光子数が何桁も多いこと(蛍光法では 10⁴ cps 程度に対して、 透過法では 10¹⁰程度)、ロックイン検出による 偏光変調法[6]を用いた高感度な XMCD 測定が行える。そのため、ビームを集光して入射 X 線強度が比較的弱い条件でも微弱 な XMCD 信号を検出できる。

図3に、250 nm の集光ビームを用いて測定した XMCD スペクトルを示す[18]。通常の X線吸収スペクトル(XAS)[図3(c)]の強度とくらべて 0.1%程度の大きさだが、明瞭 な XMCD 信号が観測された。図1(a)に生データを示すように、XMCD スペクトルの符号 は、試料に印加した磁場が X線と平行の場合と反平行で反転しており、確かに XMCD 信号が得られている。スペクトルには、高次光の影響と思われるバックグラウンドが 重畳しており、理想的なものではないが[図3(b)]、イメージングにおいてまず興味 のある磁化方向の測定には十分な精度と言える。この結果で特筆すべきは、250 nm と いうビームサイズであり、この大きさの空間分解能での磁気イメージングが期待でき るということ、また、XMCD 信号の大きさが 0.1%という非常に微弱な信号の検出に成 功したことである。当時の APS での磁気顕微鏡のビームサイズが 4 µm であったこと とからすれば[12]、十分にインパクトのある結果だった。

つづいて、試料位置を二次元走査しながら XMCD 信号を取得する方法による磁気イメ ージングを試みたが、明瞭な 2 次元像を得るには至らなかった。2003 年には、鈴木芳 生氏に加え、高野秀和氏(JASRI 現兵庫県立大)、竹内晃久氏(JASRI) らと、結像型 のピンホールカメラによる XMCD イメージングという意欲的な実験も試みたが、試料 を照明する X 線のむら、および光子数が不足したことから像を得ることはできなかっ た。BL47XU での鈴木芳生氏らとの共同研究は、これ以降は思うように進められなかっ たが、数年後に BL39XU に本格的な磁気顕微鏡を導入する際に非常に役立つ経験とな った。

3. X線磁気顕微鏡の実機開発:集光ミラーの採用

SPring-8 BL39XU での硬 X 線磁気顕微鏡の開発は、上記の初期実験から数年を経て、 実機開発に成功する。この成功の大きな要因となったのは、この間に X 線集光ミラー の性能、精度が格段に向上したことである。

4

3.1 阪大ミラーの衝撃

2000年以前には、X線の集光素子として最も有望なのはFZPだと言われていた。X線 の全反射を利用した集光ミラーも用いられていたが、集光サイズとしてはせいぜいミ クロンどまりであった。サブミクロンの集光や回折限界集光は、FZPを使わなければ 不可能であるというのが定説であった。ミラーでの集光が難しい点は、ミラー素子の 作製に要求される加工精度にある。ミラーによる集光の原理は、ミラー表面を回転楕 円面、あるいは楕円筒面に加工し、楕円の焦点に位置する光源から発した光を、ミラ ーで反射させ、もう一方の焦点位置へと結像するというものだ[11]。したがって、 ミラー表面を高精度で設計値通りの楕円筒面に加工することが必要となる。X線の全 反射が起こる視斜角(入射 X線とミラー表面とのなす角)は数 mrad と小さく、X線は ミラー表面とほぼすれすれに入射する。そのため、一般的な可視光用のミラー—1000 倍長い波長を扱い、直入射に近い条件で用いる—と比べて、加工精度に対する要求は 格段に高い。ミラー表面の傾斜誤差(スロープエラー)に対しても条件が厳しくなる。 従って、短周期の粗さと長周期の傾斜誤差をともに高精度に加工することが求められ る。このような加工は、当時は行うことができなかった。

2002年に、阪大精密工学研究科の山内和人先生、三村秀和先生(現東大)森勇藏先 生、理研の石川哲也先生らのグループが、超精密なX線ミラーを開発し、回折限界集 光に成功した。SPring-8 BL29XUにおいて、120 nm の集光サイズを達成した[20]。こ れは硬X線集光サイズにおいて当時のチャンピオンデータであった。KB 配置と呼ばれ る、二枚の円筒面ミラーを直行させた配置により、二次元の集光にも成功した[21]。 山内先生らの作製したミラーは、原子レベルで平坦な反射面を持つシリコンミラーで あり、EEM 加工(Elastic Emissoin Machining)という独自開発した方法によって加 工したものである。

図4に、彼らの論文から引用したミラー表面精度を示す[21]。理想的な円筒面からの 形状誤差は、ミラーの長手方向(100 mm)にわたり0.3 nm (rms)、6.0 nm (P-V 値) である。ミラー本体の加工精度も素晴らしいが、ミラーの角度調整のための機構もオ リジナルのアイデアで設計されたたいへん優秀なものであった。精密なミラー表面形 状が、ミラーの自重によるたわみで変形するのを最低限にするための保持方式が採用 された。ミラー底面のベッセル点をステンレスボールで3点支持し、ミラーはネジな どで締め付けずに置くだけである。また、ヒンジ機構による精密角度調整機構も、コ ンパクトながら1 µrad 以下の精度の角度調整を可能としていた。この調整機構は、 その後 SPring-8 での集光ミラー装置の標準仕様となった。さらには、X 線自由電子レ ーザー(XFEL)施設 SACLA のビームラインのモノクロメータの調整機構としても採用 された [22]。

ミラー表面形状の評価は、SPring-8 BL29LXU 1 km ビームライン[23]で行われた。こ

のビームラインでは非常に平行度の高いX線を利用することができるため、X線干渉 計測によりミラー形状誤差を精密に測定し、加工プロセスにフィードバックされたと のことである。このように、放射光による高度なX線計測により素子開発が進歩し、 そこで生み出された素子によって今度はX線の特性が向上(この場合は集光ビーム形 成)という技術革新が生まれた。この阪大の加工技術を用いたミラーは、現在では 「OSAKA Mirror」というブランドで、ベンチャー企業を通じて各国の放射光施設等に 供給されている。

阪大ミラーの成功により、ミラーでの集光は不利という定説が覆された。ミラーでの 集光には、色収差がなく、効率が高いという利点があり、XAFS や XMCD といったスペ クトロスコピーへの応用に最適である。そのため、ゾーンプレートから集光ミラーへ の転換がはかられた。

3. 2 マイクロビームX線磁気顕微鏡(2004年~2010年)

阪大ミラーの衝撃からほどなくした 2003 年、BL39XU での磁気顕微鏡の実機開発の計 画が持ち上がった。阪大ミラーを BL39XU に導入し、移相子と組み合わせることで円 偏光集光ビームを形成し、XMCD イメージングを行う装置開発に着手した。この計画は、 JASRI 利用研究促進部門の部門長であった壽榮松宏仁先生の強いリーダーシップによ って推進された。当初、筆者はこの計画に正直あまり乗り気ではなかった。前述した 初期の磁気顕微鏡開発において、XMCD 測定の統計精度で苦労した経験がその背景にあ った。XMCD の微弱な信号を測定するためにはあまり極限的な集光はできない。その分 ビームが暗くなり、X線強度が不足してしまうからである。強度を優先させると、当 時の技術では期待できる空間分解能はせいぜい1ミクロン程度となる。磁気記録媒体 の磁気ドメインや磁気デバイス素子を観察すには、もう一桁高い分解能がほしい。ま た、当時海外ですでに稼働していた軟 X 線顕微鏡では数 10 nm オーダーの分解能が出 ていたため、性能的に及ばない装置を開発するというのにも躊躇していた。壽榮松先 生からはそれでもやってみろと強く言われた。後述するように、後になって振り返れ ば、この壽榮松先生の指令は英断だったと痛感、敬服した。高垣昌史氏が JASRI のポ スドクとして計画に参加し、ミラー装置の検討を中心となって進めた。この仕事には、 ほかに河村直己、宮川勇人(JASRI,現香川大)、三村秀和、山内和人、小泉昭久、鈴 木芳生、竹内晃久、石川哲也の各氏にご協力いただいた。

1年ほどの設計検討、製作期間の後、2004年3月にはKB配置の集光ミラー装置(以下、KBミラー)がBL39XUに導入された。X線磁気顕微鏡の全体図を図5に、装置の写真を図6に示す[24],[25],[11]。KBミラーは基本的には阪大ミラーの一号機と同等の仕様であった。仕様を表1にまとめる。ミラー基板はシリコンで、表面のコーティングは行っていない。ミラー表面をPtやRhなどの重金属膜でコーティングできれば、高いX線エネルギーでの集光が可能となる。また、全反射臨界角が大きく取れるため

視斜角を大きくすることができて、ミラー素子の開口を大きくとることができる。結果として効率が向上し、集光ビームの強度が上がる。しかし、当時は原子レベルに精密加工したミラー表面の精度を維持したまま金属膜をコーティングする技術が確立 されていなかった。その後、コーティング技術がやはり阪大の山内研究室で開発され、 精密な多層膜コーティングも行えるようになった [26]。

 \mathcal{O}

2004年4月に開始したミラー装置の立ち上げ調整は順調に進んだ。ほどなくして、X 線エネルギー8 keV において、最小ビームサイズである 1.2(V)×1.0(H) µm の集光 ビームが得られた[24]。集光スポット中のフラックスは 4.8×10⁹ photons/s であっ た。2004年の7月には最初の磁気イメージング測定に成功した。最初に行ったのは、 Pt の L₃吸収端(11.6 keV) での XMCD を利用したイメージング測定であった。Pt L₃ 吸収端での XMCD 信号は、硬 X 線領域のなかではもっとも大きいので、迷わず Pt を選 択した。東北大通研の村岡裕明先生から、市販のハードディスク媒体としても使われ ている CoCrPtB 薄膜に、磁気ヘッドでトラックパターンを記録した試料を提供いただ いた。

得られた走査磁気像を図7に示す[24]。試料の磁性膜の厚さは 20 nm しかないため、 測定には蛍光法を用いた。蛍光強度の 2%程度のコントラストしかない XMCD 信号を精 度よく測定するため、このイメージングの測定では光源側のフロントエンドスリット の開口を大きくし、5.2×10¹⁰ photons/s 程度の入射 X 線強度が得られるようにした。 この条件での集光ビームサイズは1.4(V)×1.8(H) um であった。測定領域の大きさは 61×35 ミクロン、走査ステップは1ミクロンであった。全測定時間は9時間半かかっ ている。試料には幅 300 nm のトラックまで記録されていたが、分解できた最小のト ラック幅は 2.4 μm であった。ビームサイズと走査ステップ幅から考えれば妥当な結 果である。村岡先生にデータをお見せしたら、X線でこんなに見えるのかとお褒めい ただいたが、自分としては、このビームサイズで果たしてどんな応用があるのか思い つかず、今後の応用に不安を覚えた。2.4 µm という値は、当時のハードディスクのト ラックサイズと比べても一桁以上大きい値であった。それ以外の試料として、ガーネ ット膜の迷路磁区構造[図8(a)]やGd/Fe多層膜の磁区[図8(b)]なども綺麗に観察 できた。数年前に苦労しても見えなかったものが簡単に見える。ただし、カー光学顕 微鏡でも十分観察できる磁区サイズなので、それを X 線で見ることの意味を自問して いた。この BL39XU での磁気顕微鏡開発と磁気イメージングの結果は、2005 年 7 月に 姫路で開催された、第8回 X 線顕微鏡国際会議(XRM2005)にて、高垣氏により報告 された。

ところが、実際に装置が完成してみると、たとえ分解能が軟X線の顕微鏡よりも劣っていても、硬X線顕微鏡ならではの利点がいくつもあることが改めて分かった。真空環境が不要で、磁場などの外場がかけられること、バルク敏感で実デバイスの観察に

向くこと、XAFS や蛍光分析との併用が可能であることなど。また、装置を作ってみて 始めて得られるノウハウがあったし、事前には考えもしなかった応用や適用試料がそ の後に出てきた。少し後に硬 X 線光電子顕微鏡 (HX-PEEM)の実験が小野寛太 (KEK)、 脇田高徳 (JASRI, 現 岡山大)、谷内敏之 (東大)、小嗣真人 (広大 現 JASRI)、小林 啓介 (JASRI, 現高知工科大)の各氏らによって始まり[27],[28],[29]、相補的な測定 法として走査型顕微鏡でのノウハウが活かせた。さらには、この後で述べるが、マイ クロビームでの磁気顕微鏡での経験やノウハウ、こんな性能がほしいという装置への 要望などが、現在の 100 nm ビームでの磁気顕微鏡に役立っている。

4. 磁気パターン媒体への応用

X 線磁気顕微鏡が立ち上がって半年ほどした 2005 年 3 月、SPring-8 で行われたナノ テクワークショップにて顕微鏡の発表をしたところ、秋田県高度技術研究所 (AIT, 現 秋田県産業センター)の近藤祐治氏と有明 順氏に興味を持っていただき、共同研究 のご提案をいただいた。AIT で開発しているビットパターン媒体の評価を、マイクロ ビーム XMCD で試みたいとのことだった。

ビットパターン媒体は、CoPt 等の磁性薄膜を集束イオンビーム(FIB)等の方法で微細加工することで、ドット形状の素子をアレイ状に並べた磁気記録媒体である。パターン化による垂直磁気異方性の向上が利点として提唱されていたが、ヒステリシスループを直接観測することによる磁気特性評価は行われていなかった。というのは、微細加工できる面積が数ミクロン角に限られているため、SQUIDなど通常の磁気測定法では加工領域だけの特性を測定することはできないからである。代表的な磁気顕微方である磁気力顕微鏡(MFM)では磁場中の測定が難しく、また、バルクの磁化を測定できないという弱点がある。われわれが開発した硬X線磁気顕微鏡ではこれらの問題を克服できると考えた。当初考えていた磁気イメージングではなく、局所領域の磁化測定という応用があることを知り、目から鱗が落ちる思いだった。

4.1 問題点の発見と克服

近藤氏との共同研究は着実に進んだ。AIT で作製された実際の試料を使って試行錯誤 することで、装置側の問題点と試料側の問題点がともに明らかになっていった。

ビーム裾野によるバックグラウンド

当初、集光ビームによる XMCD 信号のコントラストが期待よりも小さく、バックグラ ウンドも大きいという問題があった。また、ドットがない場所に X 線を照射している のに蛍光強度が出ることもあり、理由が分からなかった。

しばらくして、その原因はビームの裾野のためであることに思い当たった。集光ビー

ムのサイズは半値幅では 1~2 µm だが、中心の周り数 10 µm にわたってビーム強度の 弱い裾野が広がっていた。ワイヤースキャンによるビームサイズ測定で得られる一次 元方向の断面としてみれば、裾野の強度はたいしたことがないように見える。しかし、 水平と垂直方向という二次元での積分値を考えると、実際には集光ビーム中心の強度 と比べて無視できないほどの寄与があった。裾野のために、ビームサイズ(の半値幅) よりもかなり大きな面積からの信号を見ていたのである。ビットパターン媒体では、 ドット間に隙間があるため、加工領域での媒体の体積が小さいことも、信号/バック グラウド比(S/B比)が稼げない理由のひとつだった。

そこで、試料の直前に直径 20~40 µm のピンホールを入れることで、ビーム裾野の強度を遮ることにした。この対策により、コントラストを改善し、バックグラウンドを減らすことができた。このピンホールを挿入する方法は、その数年前に早川慎二郎氏に教えていただいたノウハウであった。

実験室の温度変化によるドリフト

集光ミラー装置の周囲の温度変化によって、集光ビーム位置、あるいは試料位置が変 動することにも悩まされた。ビームと試料の相対位置のずれとして、1 µm 程度は簡 単に動く。アルミニウムやステンレスなどの熱膨張係数からすれば、1℃の温度変化 で、長さ10 cm の部品は2 µm も伸び縮みするから当然だ。実験室である放射光遮弊 ハッチ内には発熱する装置がいくつか設置されており、ハッチ内外の温度差は2~ 3℃ほどあった。そのため、機器調整や試料交換のためにハッチに出入りするたびに 温度が変動し、試料位置やビーム位置も安定しなかった。ハッチドアの開け閉めによ って空気の流入が起こらないように、ビニールカーテンをハッチ入り口に設置すると いう比較的簡単な対策によって、この問題は軽減された。ただし、後述するように、 現在の 100 nm サイズの集光ビームを利用する実験では、ハッチ内に精密空調を導入 し、0.1℃以下の精度での温度管理が必須となっている。

試料膜構成の最適化

試料側の問題点は、第一には目的元素以外の元素の蛍光 X 線によるバックグラウドで あった。磁性膜の配向性を高めるために、基板と媒体膜との間に Ta や W など別の元 素を緩衝層として入れることが一般的である。これらの元素からの蛍光 X 線は、目的 の Pt の蛍光線と重なって、測定の S/B 比 を低下させていた。また、基板のガラスに 含まれる微量の希土類元素からの蛍光 X 線が測定の妨げになることがあった。磁性膜 の厚さは 10~20 nm、基板厚さは 数 100 μm あるため、希土類元素の濃度が非常に小 さくても、同程度の信号として検出されてしまう。膜構成や基板材料から見直すこと で、S/B 比の高い測定が可能となった。

X線照射による試料ダメージ

もうひとつの問題は、X線照射による試料ダメージであった。大気中の測定では、試 料が数10分~数時間ですぐに劣化することが分かった。PtのXAFSで見ていると、ホ ワイトラインのピークが時間とともに成長していく様子が見られた。これは、試料が どんどん酸化していることを示唆していた。さらにX線照射を続けると、途中からホ ワイトライン強度が減っていく。X線照射後の試料を光学顕微鏡やSEMで観察すると、 磁性膜が剥がれてなくなっていた。X線は非破壊測定というのが一般的な認識だが、 高輝度放射光をミクロンサイズに集光した状況では、その常識はもはや通用しないこ とを実感した。薄膜の放射光測定の経験豊富な研究者に聞いたところ、酸素が存在す る雰囲気では、高密度のX線照射によって大気中の酸素分子がオゾン化したり、ラジ カルが発生して、試料を酸化させるということらしい。電子線リソグラフィーで微細 加工した試料については、膜にレジストが残存していると劣化が非常に早いこともわ かった。レジストに用いる有機物にX線が照射されるとラジカルができて、膜を侵す ものと推測している。そこで、窒素ガスやアルゴンガスを試料に吹き付けたり、それ らのガス雰囲気中で測定を行うことにより、試料の劣化がある程度防げることが分か った。比較的大流量(3リットル/分)での吹付けが効果が高い。

4.2 磁気パターン媒体における成果

以上のような問題点にひとつひとつ対応し、ビットパターン媒体での研究成果を得る ことができた[11],[25],[30]。硬X線磁気顕微鏡により、FIB加工領域8×8µm内の 磁気ドットに対するPtの元素選択的磁化測定を行った。ビットパターン媒体試料の ドットピッチは100 nm、ビームサイズは2×2µmであり、数10個~100個程度のド ットがビームスポット内に存在する状況で、それらのドットの全体の平均値として磁 気ヒステリシスを得た。X線照射位置を未加工部分とし、連続膜のヒステリシスも同 様に測定した。連続膜と比較して、ドットではループの角型比が増大し、保磁力も向 上することが、直接観測された。ドットサイズが小さくなるにつれ、保磁力は向上し た。この磁化曲線の変化は、連続膜では磁壁移動型の磁化反転メカニズムだったもの が、孤立ドットでは一斉回転型の反転に近づくためと説明できる。同じ材料であって も、ドットに切り分けることで媒体として垂直磁気異方性を発現することがはじめて 直接に示された。

また、初期のFIB加工による媒体では、連続膜と比べてXMCD強度の低下が見られた。 これはFIB加工時の磁気的ダメージが原因であることを明らかにした。高エネルギー のGaイオンによるFIB加工によって、ドット周辺の一定の幅の領域が磁化を失って いるモデルで磁化の低下を説明することができた。この結果を受け、電子線リソグラ フィーによるパターン描画と低エネルギーArイオン照射による加工ダメージの少な い方法へとドット加工の手法が移行した。Arイオンミリングでは、ドットサイズによ る磁化の低下は見られず、加工ダメージが無視できることが示された。その後、近藤 らは、媒体の特性に関わるスイッチング磁場分散(SFD)とドットサイズの関係を詳 細に調べている[31],[32]。詳細は、原著論文および磁気イメージングハンドブック を参照されたい。

ビットパターン媒体の研究と並行して、同じく AIT の田口香氏、千葉氏による磁気へ ッドの観察も行われた。磁気ヘッドはコイルや軟磁性膜などが多層構造からなってお り、埋もれた軟磁性層のイメージングを試みた。さらにはヘッド駆動時の時分割観察 も試み、硬 X 線の特徴が出せるテーマとなった。当時の空間分解能ではヘッド内部の 磁化分布までは分解できなかったが、現在のナノビーム磁気顕微鏡を用いれば、高分 解能での観察も十分可能と考える。

5. ナノビームX線磁気顕微鏡―最新技術と将来(2010年~現在)

5.1 低炭素プロジェクトによる X線ナノ分光ステーションの建設

阪大・理研による X 線集光ミラーの開発はその後も素晴らしく進展し、より高度な加 工によるミラーが作製されていった。ミラー表面精度を維持したまま金属膜や多層膜 をコーティングする技術が開発された[26]。また、全長数 10 cm の長いミラーにおい ても、全域に渡って要求される形状精度を満足する加工が可能となった[33]。これら の高度化により、より大きな視斜角と光学開口をもつ集光ミラー光学系が実現した。 さらには、ミラー背面に装着した多数のピエゾ素子により、ミラー形状を制御するア ダプティブミラーの技術が開発された[34]。これによって、残存する加工誤差による 収差を補正することが可能となった。これらの技術を駆使し、2010 年、世界最小であ る集光系 7 nm の X 線ビームの形成に成功した[35]。上記の多層膜ミラーとアダプテ ィブ収差補正ミラーを組み合わせた光学系を用いて、SPring-8 1 km ビームラインに おいて実現された。

この7 nm ビームは、究極の集光サイズを追求する最先端の研究開発成果であった。 このビームをただちに利用研究に用いるにはいたっておらず、安定化等に関するさら なる研究開発が必要である。しかし、7 nm ビーム形成に至る過程で開発された集光 ミラー技術を応用し、100 nm 径のナノビームを安定に形成、応用研究に提供するこ とは十分可能であり、また意義のあることと考えられた。

そこで、2010 年度に、文部科学省 「低炭素社会構築に向けた研究基盤ネットワーク 整備事業」により、SPring-8 の2本のビームライン、BL39XU と BL37XU に顕微計測専 用の実験ステーションの整備が行われた。BL39XU には顕微 XAFS、XMCD 専用の「ナノ 分光ステーション」、BL37XU には顕微蛍光 X 線分析専用の「ナノ蛍光分析ステーショ ン」が設置された[36],[37],[38],[39]。ともに、100 nm サイズの集光 X 線ビームの 形成が可能な KB ミラーシステムを導入した。以下では、BL39XU での新たな X 線磁気 顕微鏡システムについて述べる。この新ステーションの開発は、理研、JASRI を中心 とした多くの方々のご尽力によるものである。とりわけ、JASRI 光源・光学系部門の 大橋治彦、湯本博勝、小山貴久、山崎裕史、竹内智之の各氏には多大な貢献をいただ いた。プロジェクト全体の指揮は、後藤俊治、山本雅貴、高田昌樹、石川哲也の各氏 に執っていただいた。

BL39XU ナノ分光ステーションでは、集光径 100 nm の X 線(以下、ナノビーム)を安 定に供給し、顕微 XAFS や顕微 XMCD といった利用研究に提供することを目的としてい る。そのため、単に小さな X 線ビームを生成するだけでなく、ビーム強度や位置の安 定性、および実験装置の安定性や拡張性という点を重視し、ビームライン全体の改良 を行った[38]。装置の試験測定においては事前の想定以上に様々な問題が生じた。マ イクロビームからナノビームへの移行のためには、ひとつひとつの問題を解決してい く必要があった。

専用実験ハッチ

元々、BL39XU は光源から 46 m 位置に既存の実験室(X 線遮弊ハッチ)があったが、 その先にビームラインを延伸し、ナノ分光ステーション専用の実験室を光源から 74 m の地点に建設した。SPring-8 実験ホールの外周壁のすぐ内側であり、可能な限り光源 から遠い位置とした。集光素子による縮小比は、光源から集光素子までの距離と、集 光素子の焦点距離との比で決まる。ビームラインを延長して光源と集光素子の距離を とることで、より小さなビームを得ることができる。

集光ミラー

図9に集光ミラー装置の写真を示す。用いた集光ミラー[36],[38]は進化した阪大ミ ラーであり、株式会社ジェイテックから供給された。表面には Rh 膜がコーティング されており、従来のシリコンミラーよりも視斜角を大きく取れる。また、ミラー全長 が二倍以上となっており、数倍の開口面積を取ることができる。ミラーの仕様を表1 に示す。2枚の楕円筒面ミラーを KB 配置で用い、それぞれのミラーが水平と垂直方 向の集光を受け持つ。全反射のカットオフエネルギーは 16 keV であり、5~16 keV のX線エネルギーにおいて集光ビームを利用することが可能である。

ミラー調整用の機構はステージの構成など基本的には従来のミクロン集光と同じだ が、より頑丈な作りとなっており剛性が向上している。ミラーシステムと試料ステー ジは、同一の架台上に設置される。振動や熱膨張を考慮し、架台には重量 3.5 トンの 御影石を用いた。

モノクロメータおよび光学素子

集光ミラーの導入に併せて、ビームラインの二結晶分光器をシリコンの液体窒素間接 冷却型モノクロメータに更新した[38]。従来用いていた間接水冷型ダイヤモンド結晶 によるモノクロメータ[40]よりも、より大きなX線強度が得られるという利点がある。 また、ダイヤモンドの結晶欠陥に起因するとみられる単色 X 線ビームの不均一性が、 集光ビームのサイズに影響することが指摘されていたため、より結晶性の高いシリコ ンモノクロメータを採用した。ただし、冷媒である液体窒素の循環に伴う振動や圧力 変化が分光結晶に伝わり、ビームの安定性が損なわれることが懸念された。この問題 に対処するため、液体窒素を通すチューブを二重構造とし、とくに蛇腹部分で生じる 乱流による振動を抑制した。また、液体窒素循環のためのクライオスタットの回転数 やガス圧力を徹底的に調整し、ビーム振動を最小とした。これらの改良によって、液 体窒素冷却モノクロメータのビーム振動レベルは、従来の数分の1に抑えられた [41]。 ナノビーム安定化のために行ったこれらの振動対策は、SPring-8 の他の多くのビーム ラインでの同種のモノクロメータの振動抑制にも大いに役立っている。

二結晶分光器以外の光学系コンポーネントについてもいくつかの改良が行われた。X 線の光路上にあるベリリウム窓をより純度や均一性の高い材料(スペックルフリー) に交換し、X線が窓材で散乱することによるコヒーレンスへの影響を低減させた[42]。 また、仮想光源として用いる、ビームライン輸送チャンネルの4象限スリットの刃や モーターステージを高精度化することで、真空中の駆動でもミクロン以下の位置再現 性を確保した。

装置環境の安定化

実験ハッチにおいてはミラー装置周りの環境の安定化のため、精密温度制御機構の導入、および防振対策を施した。0.01℃単位での温度制御が可能な専用の空調設備を導入した。空調装置から吹き出す空気の風圧も安定性を損ねる要因となりえるため、吹き出し口には細かいメッシュ状の布を用いて、緩やかに空気が吹き出るように工夫されている。床以外のハッチ壁面には住宅用の断熱材を設置し、その上を温度調整用の板状ヒーターで覆った。ハッチ内外にケーブル等を通すためのダクト(小さなドア)も、ケーブル以外の隙間を可能な限り密閉した。ハッチ入り口には、マイクロビームで効果の高かったビニールカーテンを当然設置した。(空調で吹き出す風によってハッチ内の気圧の方がハッチ外よりも高いため、カーテンの効果もより高いようである。)これらの方法によって、ハッチ内の温度は安定化されており、最も条件のよい場合で一日の温度変動が±0.02℃/日以内に抑制されている[38]。

顕微 XMCD 用電磁石

ナノ XMCD 専用の電磁石を 2012 年に科研費にて整備導入した。この電磁石は集光ミラ ーのワーキングディスタンス 78 mm に対応した非対称な磁極形状を持ち、比較的コ ンパクトでありながら 2.2 T の最大磁場を試料に印加することが可能である。この電 磁石により、高い保磁力をもつ磁気記録媒体や永久磁石の磁気イメージングや局所磁 気解析が行える。

13

集光ビーム性能

2011年4月上旬より、モノクロメータ、集光ミラー装置の立ち上げ調整を開始し、4 月末には100 nm の集光ビームを得ることに成功した。Ta テストパターンを用いたイ メージング測定の試験では、100 nm の線幅を分解できることを確認した[36]。像の 歪みも少なく、数時間の測定では十分な安定性があることが確かめられた。100 nm の 集光条件においても、移相子の有無による集光サイズへの影響も無視できる程度であ ることが明らかになった[37]。

このX線顕微鏡では、仮想光源として用いる輸送チャンネルのスリットの開口を変化 させることで、2つの集光モードを使い分けることができる。ひとつは高分解能モー ドであり、仮想光源サイズを8(垂直)×18(水平)µmとすることで、試料位置で上述 の100×100 nmのビームが得られる。この場合、光源からのX線強度のごく一部しか スリットを通過しないので、得られるフラックスは10⁹~10¹⁰ photons/s である。も う一つは、高フラックスモードと呼ばれるモードである。このモードでは300×300 nm のビームサイズで、10¹² photons/s のフラックスが得られる。垂直方向の仮想光源ス リットを全開にし、垂直方向はアンジュレータ光源の発光点自体をミラーで直接集光 する。水平方向は仮想光源スリットを光源とし、開口は54 µm まで開けることでフラ ックスを稼ぐ。1秒間に10¹² 光子というのは、SPring-8 の一般的な偏向電磁石ビー ムラインの総光子フラックスを超える強度であり、そのフラックスが 300 nm 角の領 域に集光される凄まじい密度である。アンジュレータービームラインである BL39XU の非集光ビーム(~10¹³ photons/s)と比較しても、光子密度で5桁増加している。

現状の安定性と対応すべき課題

ミラー使用の目処がついた 2011 年 5 月からは、調整実験と並行してナノ分光ステーションの共同利用を開始した。比較的短期間で立ち上がり、集光サイズ、フラックスといったビーム性能は期待通りであったものの、とくに安定性に関わる様々な問題が明らかになり、現在でも改良や対応を継続している。2013 年冬におけるビーム位置、試料位置の相対位置の安定性は、4 時間で水平方向が±35 nm 以内, 垂直方向が±100 nm 以内という測定結果が得られている。その測定をまたぐ期間でのハッチ内の温度安定性は、1 2 時間で±0.04℃ 以内であった。

当初は、ビーム位置の長時間のドリフトに悩まされた。数日単位でビームの位置が一 方向にずれていってしまった。これは架台自体の温度が安定するまでの時間、あるい は床が安定するまでに日から月単位の時間がかかるためだと考えられた。早い周期で のビーム振動の問題もあった。ミラー調整メカの振動により、ビーム位置が数 10Hz で振動していることが分かった。結果として集光ビームサイズが大きく計測され、期 待される集光サイズにならなかった。調整機構の下部にジェル状の振動吸収材を引く などして対処を行った。上述した液体窒素循環によるモノクロ結晶の振動も、完全に は取りきれていない。結晶角度にしてマイクロラジアン以下のオーダーの振動が残っている。温度安定性については、ユーザー持ち込みの電源機器など、熱源となる装置をハッチ内に入れざるを得ない実験での熱ドリフトの問題がある。

さらには、長期間 X 線をミラーに照射することによる、ミラー表面の汚染の問題も明 らかになった。ミラーの周囲はアクリルケースで覆い、ヘリウムガス雰囲気にしてい る。それでも、長期間の X 線照射によって炭素系の物質がミラー表面に付着し、集光 特性に影響を与える。集光ビームサイズの拡大や集光ビームの裾野の拡大、あるいは 散乱によるバックグラウンドが大きくなるという影響が見られた。汚染されたミラー 表面は白濁したように見える。この問題には、Rh を1年毎に再コーティングすること で対処している。あるいは、応急処置としてはミラー表面を純水で洗浄することでい くらか改善する。根本的な解決には、ミラー周囲を真空にする、あるいは炭素系ガス の分圧を下げるなど、ミラー周囲の雰囲気の最適化が必要だと考えている。

100 nm サイズのビームを形成するには、当然ながら高度な技術が必要である。だが、 そのビームをビーム径以下の安定度で維持することの方がさらに難しく、より高度な 開発が必要だということを実感している。放射光の場合、STM などの卓上あるいは一 部屋に収まるサイズの閉じたシステムとは異なり、光源加速器からビームライン、集 光素子、試料周りまでは数 10 m のオーダーで複合的な装置を取り扱う。これらすべ ての装置を一定の水準以上に安定化させることが第一であり、現在はそこに注力して いる。各機器の安定化が達成できたら、次はフィードバックなどによりそれぞれの機 器を連携・協調させて全体を安定化させることが必要と考えられる。このような安定 化の手法が、将来、さらに微小なサイズの 10 nm や1 nm サイズのX線ビームを扱う ためには必須となるだろう。

5.2 ナノビーム利用研究

BL39XUのナノビーム顕微鏡装置を用いて、いくつかの特色ある利用研究が進められて いる。ビットパターン媒体に関する共同研究を引き続きAITの近藤氏らと行っている。 マイクロビームでは磁気ドットの集合を観察していたのだが、ナノビームでは単一ド ットの磁化曲線の観察が可能となった[37]。直径 200 nm の磁気ドットを 1 µm 間隔 で配置した CoPt 試料に対して、300 nm のビームを用いることで、ビームスポット内 に一個の磁気ドットが照射される状況を実現した。CoPt 単一ドットに対して、蛍光イ メージング、XAFS、XMCD スペクトル、元素選択的ヒステリシスといった測定が行える ようになった。高フラックスモードでの 300 nm ビームは非常に明るく、厚さ 15 nm の 磁性膜ドットからの蛍光 X 線強度が 10,000 cps 程度得られる。従来の非集光ビーム を使った XMCD 測定と同等なセンス、測定時間での実験を行うことができた。

ただし、依然として安定度の問題は残る。測定中に試料位置がずれてしまい、目的の

ドットからビームが外れてしまう。とくに、電磁石によって磁場を印加すると、電磁 石の発熱により、試料位置がミクロンオーダーで動いてしまう。このことに対応する ため、測定中に頻繁に(測定点一点ごとに)試料位置をスキャンし、常にドットの中 心にビームが当たるように試料位置を補正するしながら測定を行った。現在、電磁石 の発熱を試料位置や試料ホルダーに伝えないような熱遮弊部品の追加を検討してい る。また、ミクロンビームと比べて、ナノビームではX線の密度が2桁程度高いため、 試料へのダメージもより大きい。ミクロンビームでは窒素ガスの吹付けでほぼ酸化を 防げていたが、ナノビームでは窒素ではだめで、より活性の低いアルゴンガスを用い ることで数時間の間は酸化を防ぐことができている。現在、より小さい単一ドットの 磁化曲線の測定を試みており、36 nm 径の単一ドットの磁化曲線が得られている[43]。

そのほかには、ネオジム焼結磁石の組織構造と磁区構造の相関を調べる研究が進行中 である[44]。ネオジム磁石の磁化反転過程において、試料粒組織のどこから逆磁区が 生成し、どのように磁区が広がり、最終的に試料全体の磁化反転が行われるのかを、 ミクロンからサブミクロンのスケールで観察する。これにより、ネオジム磁石の磁化 反転メカニズムを解明し、より保磁力の高い磁石開発、保磁力制御につながると期待 される。強力永久磁石の開発という本プロジェクトのテーマとも関係が深い。

同様に、100 nm 径のビームを用いた XAFS 研究、すなわちナノ XAFS も行われている。 名古屋大の唯美津木先生、分子研の横山先生らのグループによって、単一触媒粒子内 の元素および化学状態分布が可視化されている[45]。触媒反応過程で、Ce など触媒作 用を司る元素の価数変化が局所的な XAFS スペクトルから同定されている。また、 GeSbTe 相変化材料を集積化した相変化メモリ (P-RAM) において、単一素子の局所構 造変化が観測されている[46]。素子に電流を流すことで、高抵抗状態 (アモルファス) と低抵抗状態 (結晶)の間のスイッチングがナノ XAFS によって直接観測された。

現在、時分割計測とナノビームを組み合わせることで、時分割 XMCD や時分割 XAFS の 開発を行っていく取り組みが、JASRI 内部の高度化開発として進められている。時分 割 XMCD によって、磁気ドットや、磁気ヘッド、M-RAM 等の実デバイスに対して磁気情 報書き込み時の材料・デバイス挙動をリアルタイムに観察する。時分割 XAFS では、 上記の P-RAM や触媒試料の構造、価数変化の実時間観測が可能となるだろう。この時 分割測定には、最近 SPring-8 で開発された高速X線チョッパーが活用される。この チョッパーは電子バンチの周回周波数である 200 kHz でシャッターの開閉が可能で あり、シングルバンチ X 線パルスをロスなく切り出すことができる。このチョッパー の活用により効率が高く、時間構造の自由度の高い時分割測定が実現する。

6章 おわりに

筆者が SPring-8 でX線の磁気分光研究に従事することになったのは、1996 年に理化 学研究所の基礎科学特別研究員に応募したのがきっかけであった。応募テーマは、「シ ンクロトロン放射光を用いた X線磁気顕微鏡の開発と磁性体への応用」というものだ った。当時面接に使った OHP を引っ張りだしてみると、移相子で円偏光を生成し、ゾ ーンプレートによる集光と組み合わせて、磁区構造と結晶構造の相関を観たいなどと 書いてある。自分としては、SPring-8 に来てからは磁気顕微鏡の開発以外にも、いろ いろな研究をしたと思い込んでいたが、実は最初に決めた目的に沿ってずっと進んで きたのかもしれないと、本稿を準備しながら思い直した。

その面接では、空間分解能は 100 Å で磁壁の内部を観たいなどと、無茶なことを言った記憶がある。面接官の先生(千川純一先生だった気がする)から、本当に 100 Å = 10 nm の分解能が出るのか?と問い詰められ、SPring-8 でじきにできますといいか げんなことを答えたら、こいつわかっとらんな、という感じで渋い顔をされた。結果 は補欠合格だった。ちなみに、10 nm の空間分解能での放射光磁気観察は、18 年近く 経った現在でもまだ実現していない。ただ、10 nm を切る分解能は一つの目標になっているので、目の付け所としてはよかったのかもしれない。

2014 年の現在、X線で 10 nm 空間分解能での磁気観察に本気で挑戦・実現できると ころまで来ている。ナノビーム以外にも、レンズレスホログラフィー[47]やコヒーレ ント磁気回折[48]など、X線の干渉性を利用したイメージング手法が 2000 年代に半 ばに開発され、一般的な手法として普及している。これらのコヒーレントイメージン グの手法はX線自由電子レーザーでの観察と相性がよく、ピコ秒以下の超高速磁気イ メージングへの展開[49]が検討されている。それらの動向も考慮しながら、今後もX 線の磁気観察手法を開発していく所存である。観察するだけでなく、X線を使って磁 性体のスピンを制御したいというのが、近い将来の目標というか夢みている実験であ る。

今後の放射光光源の進化によっても、X線ナノビームを用いた顕微磁気観察の格段の 進展が期待できる。SPring-8 では、SPring-8 次期計画として大規模な蓄積リングの アップグレードが計画されており、光源輝度を現在の100 倍以上に高める新たな蓄積 リングのデザインが提案されている[50]。この光源から得られる超高輝度・高コヒー レンスX線をミラーで集光することにより、ナノビームの分解能と光子数は数桁向上 する。数 10 nm 四方に 10¹³ photons/s の超高密度ビームの利用、あるいは、シング ルナノメートルの分子サイズビームでの顕微観察が現実的な研究テーマとして検討 されるようになるだろう。

「技術の伝承プロジェクト」への参加をお声掛けくださり、本稿を著す機会を与えて 下さった木下豊彦先生、越川孝範先生に心から感謝いたします。本文で述べたように、 磁気顕微鏡の開発には非常に多くの方々のご尽力をいただきました。本文中にお名前 を記しました共同研究者各位、日々お世話になった SPring-8 のスタッフにはここに 改めてお礼申し上げます。

参考文献

- G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, andG. Materlik, Phys. Rev. Lett. 58, 737 (1987).
- [2] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti, Phys. Rev. B 42, 7262 (1990).
- [3] Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, J. D. Wang, and S. Aoki, Rev. Sci. Instrum. 66, 1534 (1995).
- [4] P. Fischer, G. Schutz, G. Schmahl, P. Guttmann, and D. Raasch, Z. Phys. B 101, 313 (1997).
- [5] H. Maruyama, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Ito, E. Arakawa, J. Kokubun, K. Hirano, K. Horie, S. Uemura, K. Hagiwara, M. Mizumaki, S. Goto, H. Kitamura, K. Namikawa, and T. Ishikawa, J. Synchrotron Rad. 6, 1133 (1999).
- [6] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto, and T. Ishikawa, Jap. J. Appl. Phys. 37, L1488 (1998).
- [7] Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, J. Wang, and S. Aoki, J. Appl. Phys. 80, 3124 (1996).
- [8] P. Fisher, T. Eimüller, G. Schütz, P. Guttmann, K. Pruegl, and G. Bayreuther, J. Phys. D 31, 649 (1998).
- [9] P. Fischer, T. Eimüller, G. Schütz, G. Bayreuther, S. Tsunashima, N. Takagi, G. Denbeaux, and D. Attwood, J. Synchrotron Rad. 8, 325 (2001).
- [10] 大橋治彦,平野馨一 編,*放射光ビームライン光学技術入門*(日本放射光学会, 2008).
- [11] 日本磁気学会編,磁気イメージングハンドブック(共立出版, 2010).
- [12] J. Pollmann, G. Srajer, J. Maser, J. C. Lang, C. S. Nelson, C. T. Venkataraman, and E. D. Isaacs, Rev. Sci. Instrum. 71, 2386 (2000).
- [13] K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka, and S. Kikuta, Jap. J. Appl. Phys. 30, L407 (1991).
- [14] M. Kuroda, H. Yamazaki, M. Suzuki, H. Kimura, I. Kagaya, C. Yamashita, and T. Ishikawa, J. Synchrotron Rad. 5, 1211 (1998).
- [15] M. Yabashi, H. Yamazaki, K. Tamasaku, S. Goto, K. T. Takeshita, T. Mochizuki, Y. Yoneda, Y. Furukawa, and T. Ishikawa, Proc. SPIE 3773, 2 (1999).

- T. Mochizuki, Y. Kohmura, A. Awaji, Y. Suzuki, A. Baron, K. Tamasaku,
 M. Yabashi, H. Yamazaki, and T. Ishikawa, Nucl. Instr. Meth. A 467, 647 (2001).
- [17] K. Tamasaku, M. Yabashi, D. Miwa, T. Mochizuki, and T. Ishikawa, Proc. SPIE 4782, 132 (2002).
- [18] 鈴木芳生, SPring-8年報 2001年度, p. 139 (2002).
- [19] M. Suzuki, 3rd International Conference on Diamonds for Modern Light Sources, Awaji, (2008).
- [20] K. Yamamura, K. Yamauchi, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, and Y. Mori, Rev. Sci. Instrum. 74, 4549 (2003).
- [21] K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, and Y. Mori, Jap. J. Appl. Phys. 42, 7129 (2003).
- H. Ohashi, M. Yabashi, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, T. Togashi, Y. Senba,
 T. Koyama, H. Yumoto, K. Miyokawa, T. Ohsawa, S. Goto, and T. Ishikawa,
 Nucl. Instr. Meth. A 710, 139 (2013).
- [23] K. Tamasaku, Y. Tanaka, M. Yabashi, H. Yamazaki, N. Kawamura, M. Suzuki, and T. Ishikawa, Nucl. Instrum. Meth. A 467, 686 (2001).
- [24] M. Takagaki, M. Suzuki, N. Kawamura, H. Mimura, and T. Ishikawa, IPAP Conf. Ser. 7, 267 (2006).
- [25] M. Suzuki, M. Takagaki, Y. Kondo, N. Kawamura, J. Ariake, T. Chiba, H. Mimura, and T. Ishikawa, AIP Conf. Proc. 879, 1699 (2007).
- [26] H. Mimura, S. Matsuyama, H. Yumoto, H. Hara, K. Yamamura, Y. Sano, M. Shibahara, K. Endo, Y. Mori, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Jap. J. Appl. Phys. 44, L539 (2005).
- [27] T. Wakita, T. Taniuchi, K. Ono, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Takagaki, H. Miyagawa, F. Guo, T. Nakamura, T. Muro, H. Akinaga, T. Yokoya, M. Oshima, and K. Kobayashi, Jap. J. Appl. Phys. 45, 1886 (2006).
- [28] T. Taniuchi, T. Wakita, M. Takagaki, N. Kawamura, M. Suzuki, T. Nakamura,
 K. Kobayashi, M. Kotsugi, M. Oshima, H. Akinaga, H. Muraoka, and K. Ono,
 AIP Conf. Proc. 879, 1353 (2007).
- M. Kotsugi, C. Mitsumata, H. Maruyama, T. Wakita, T. Taniuchi, K. Ono,
 M. Suzuki, N. Kawamura, N. Ishimatsu, M. Oshima, Y. Watanabe, and M. Taniguchi, Appl. Phys. Express 3, 013001 (2010).
- [30] Y. Kondo, T. Chiba, J. Ariake, K. Taguchi, M. Suzuki, M. Takagaki, N. Kawamura, B. M. Zulfakri, S. Hosaka, and N. Honda, J. Mag. Mag. Mat. 320, 3157 (2008).

- [31] 近藤祐治,千葉 隆,有明 順,田口 香,鈴木基寛,河村直己,Z. Bin MOHAMAD, 保坂純男,長谷川 崇,石尾俊二,本田直樹,J. Mag. Soc. Jap. 34, 484 (2010).
- [32] Y. Kondo, J. Ariake, T. Chiba, K. Taguchi, M. Suzuki, N. Kawamura, and N. Honda, Physics Procedia 16, 48 (2011).
- [33] H. Mimura, S. Morita, T. Kimura, D. Yamakawa, W. Lin, Y. Uehara, S. Matsuyama, H. Yumoto, H. Ohashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohmori, and K. Yamauchi, Rev. Sci. Instrum. 79, 083104 (2008).
- [34] T. Kimura, S. Handa, H. Mimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, S. Matsuyama,
 K. Inagaki, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa,
 and K. Yamauchi, Jap. J. Appl. Phys. 48, 072503 (2009).
- [35] H. Mimura, S. Handa, T. Kimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, H. Yokoyama, S. Matsuyama, K. Inagaki, K. Yamamura, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Nat. Phys. 6, 122 (2010).
- [36] T. Koyama, H. Yumoto, Y. Terada, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki,
 N. Nariyama, T. Matsushita, Y. Ishizawa, Y. Furukawa, T. Ohata, H.
 Yamazaki, T. Takeuchi, Y. Senba, Y. Matsuzaki, M. Tanaka, Y. Shimizu,
 H. Kishimoto, T. Miura, H. Kimura, K. Takeshita, H. Ohashi, M. Yamamoto,
 S. Goto, M. Takata, and T. Ishikawa, Proc. SPIE 8139, 81390I (2011).
- [37] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, Y. Terada, T. Uruga, A. Fujiwara, H. Yamazaki, H. Yumoto, T. Koyama, Y. Senba, T. Takeuchi, H. Ohashi, N. Nariyama, K. Takeshita, H. Kimura, T. Matsushita, Y. Furukawa, T. Ohata, Y. Kondo, J. Ariake, J. Richter, P. Fons, O. Sekizawa, N. Ishiguro, M. Tada, S. Goto, M. Yamamoto, M. Takata, and T. Ishikawa, J. Phys.: Conf. Ser. 430, 012017 (2013).
- [38] H. Ohashi, H. Yamazaki, H. Yumoto, T. Koyama, Y. Senba, T. Takeuchi, Y. Terada, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, N. Nariyama, K. Takeshita, A. Fujiwara, T. Uruga, S. Goto, M. Yamamoto, M. Takata, and T. Ishikawa, J. Phys.: Conf. Ser. 425, 052018 (2013).
- [39] 鈴木基寬,寺田靖子,大橋治彦 他, SPring-8利用者情報 16, 201 (2011).
- [40] M. Yabashi, S. Goto, Y. Shimizu, K. Tamasaku, H. Yamazaki, Y. Yoda, M. Suzuki, Y. Ohishi, M. Yamamoto, and T. Ishikawa, AIP Conf. Proc. 879, 922 (2007).
- [41] H. Yamazaki, H. Ohashi, Y. Senba, T. Takeuchi, Y. Shimizu, M. Tanaka,
 Y. Matsuzaki, H. Kishimoto, T. Miura, Y. Terada, M. Suzuki, H. Tajiri,
 S. Goto, M. Yamamoto, M. Takata, and T. Ishikawa, J. Phys.: Conf. Ser.
 425, 052001 (2013).

- [42] S. Goto, S. Takahashi, Y. Inubushi, K. Tono, T. Sato, and M. Yabashi, Proc. SPIE 8139, 813910 (2011).
- [43] M. Suzuki, Y. Kondo et al., in preparation.
- [44] M. Suzuki, T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani, N. Tsuji, T. Ohokubo, K. Hono, and S. Hirosawa, 58th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM), Denver (2013).
- [45] N. Ishiguro, T. Uruga, O. Sekizawa, T. Tsuji, M. Suzuki, N. Kawamura,
 M. Mizumaki, K. Nitta, T. Yokoyama, and M. Tada, ChemPhysChem 15 (2014), accepted.
- [46] J. H. Richter, A. V. Kolobov, P. Fons, X. Wang, K. V. Mitrofanov, J. Tominaga, H. Osawa, and M. Suzuki, MRS Proc. 1563, mrss13-1563-ee11-04 (2013).
- [47] S. Eisebitt, J. Lüning, W. F. Schlotter, M. Lörgen, O. Hellwig, W. Eberhardt, and J. Stöhr, Nature 432, 885 (2004).
- [48] J. J. Turner, X. Huang, O. Krupin, K. A. Seu, D. Parks, S. Kevan, E. Lima,
 K. Kisslinger, I. McNulty, R. Gambino, S. Mangin, S. Roy, and P. Fischer,
 Phys. Rev. Lett. 107, 033904 (2011).
- [49] T. Wang, D. Zhu, B. Wu, C. Graves, S. Schaffert, T. Rander, L. Müller, B. Vodungbo, C. Baumier, D. P. Bernstein, B. Bräuer, V. Cros, S. de Jong, R. Delaunay, A. Fognini, R. Kukreja, S. Lee, V. Lopez-Flores, J. Mohanty, B. Pfau, H. Popescu, M. Sacchi, A. B. Sardinha, F. Sirotti, P. Zeitoun, M. Messerschmidt, J. J. Turner, W. F. Schlotter, O. Hellwig, R. Mattana, N. Jaouen, F. Fortuna, Y. Acremann, C. Gutt, H. A. Dürr, E. Beaurepaire, C. Boeglin, S. Eisebitt, G. Grübel, J. Lüning, J. Stöhr, and A. O. Scherz, Phys. Rev. Lett. 108, 267403 (2012).
- [50] SPring-8 Upgrade Plan Preliminary Report (2012).



図1 フレネルゾーンプレート (FZP) を用いた硬 X 線磁気顕微鏡の光学系。



図2 フレネルゾーンプレートによる集光ビームの形状。(a) ダイヤモンド移相子を用いない直線偏光 ビームの集光形状、(b) ダイヤモンド移相子を光路に挿入した、円偏光ビームの集光形状。



図3 円偏光集光ビームによる純鉄フォイルのX線磁気円二色性(XMCD)スペクトル。(a) XMCD スペ クトルの生データ。(b)バックグラウンドを除去した XMCD スペクトル。正負の磁場方向に対する XMCD スペクトルから求めた。(c) 同試料のX線吸収(XAS) スペクトル。



図4 大阪大学精密工学研究科で開発された、X線集光ミラー。(a) ミラー本体。(b) ミラー表面形状。(c) 表面の加工誤差(K. Yamauchi, JJAP 2003 から引用)。



図5 SPring-8 BL39XU 初代磁気顕微鏡の実験配置(磁気イメージングハンドブックから転載)。



図6 SPring-8 BL39XU 初代磁気顕微鏡の集光ミラーと試料周りの様子。



図7 CoPtCrB磁気記録膜の XMCD 磁区像 (M. Takagaki et al., IPAP Conf. Ser. 7, 267 (2006). より)。



図8 (a) テルビウム鉄ガーネット ($Tb_3Fe_5O_{12}$)、(b) Fe/Ge 多層膜の XMCD 磁区像。



図9 ナノビーム磁気顕微鏡装置

		-
	マイクロビーム磁気顕微鏡	ナノビーム磁気顕微鏡
材質	シリコン (垂直ミラー, V)	シリコン (垂直ミラー, V)
	シリコン (水平ミラー, V)	合成石英 (水平ミラー,H)
コーティング材	なし	Rh 50 nm
ミラー長さ	100 mm (V), 100 mm (H)	300 mm (V), 200 mm (H)
反射面の形状	楕円筒面	楕円筒面
研磨方法	Elastic emission machining	Elastic emission machining
形状誤差	0.3 nm (rms)	0.38 nm (rms) (V)
		0.12 nm (rms) (H)
焦点距離	300 mm (V), 150 mm (H)	460 mm (V), 200 mm (H)
中心視斜角	1.4 mrad (V), 1.8 mrad (H)	4.0 mrad (V), 3.8 mrad (H)
開口	0.14 mm (V) \times 0.18 mm (H)	1.2 mm (V) \times 0.76 mm (H)

表1 SPring-8 BL39XU における KB 集光ミラーの仕様

放射光光電子顕微鏡による磁区観察

公益財団法人高輝度光科学研究センター 木下 豊彦 本稿では、光電子顕微鏡(Photoemission Electron Microscope; PEEM)を用いた磁気状態観 察に関して紹介する。特に放射光の偏光特性を利用した磁気状態のイメージングの開発、実験に 関わる話題を紹介する。また、筆者が携わってきた開発、実験に関して特に苦労した事柄などに ついて記述する。

1. 光電子顕微鏡による磁区観察の原理

ここでは、光電子顕微鏡を用いてどのように磁区観察を行うことができるのか、原理と装置の 概略、注意を払うべきことなどについて紹介する。

1.1 光電子顕微鏡による磁区観察の概略

まず、本章では光電子顕微鏡を用いた磁 区観察の原理について簡単に紹介する。 物質の表面に光をあてると光電効果によ り真空中に光電子が飛び出す¹⁾。光をあて た場合、光電子だけでなく、その光電子が 物質の中を進行する間に他の電子を励起し たり、自分自身がエネルギーを失ったりし て、2次電子が放出される。このような光 によって励起された電子が、試料表面上の どこから数多く放出されているのかどうか を実空間の画像としてイメージするのが光 電子顕微鏡(PEEM)である。

走査電子顕微鏡とは異なり、細く絞った 電子線を走査するのではなく、試料から出 てきた電子を拡大結像する。すなわち、試 料をカソードとみなした電子顕微鏡と考え ることもできる。その意味では動作原理は 透過電子顕微鏡に近い。ただし、PEEM で は透過型電子顕微鏡とは異なり、観察試料 表面側に(すなわち光や電子が反射する側



に)レンズ系が配置されている。又反射型電子顕微鏡と比べると、試料表面に垂直に信号を取り 出すので、像のゆがみが小さく解釈が容易であるという特徴がある。

図1に、こうした装置を用いて磁気イメージングを行う場合の模式図を示す。 PEEM の励起 光として円偏光や直線偏光を用いると、偏光ベクトルの向きと試料の磁化の向きに応じて、電子 の放出のされやすさに大小が現れる。この投影イメージは磁区情報に他ならない。図では、磁化 の向きに応じて電子の放出分布に差が現れ、それらの電子を、静電レンズ系によって拡大結像し、 MCP (マイクロチャンネルプレートあるいはマルチチャンネルプレート: Micro-Channel Plate、 Multi-Channel plate) と呼ばれる電子検出器で増幅した後、蛍光スクリーンを光らせてイメージ を観測する様子を示している。通常、蛍光スクリーンの後ろには CCD ビデオカメラが設置され、 データを取得する。

励起光として放射光を用いた光電子顕微鏡の場合、元素に特有の磁気状態が観測可能であるこ と、反強磁性体の磁区観察も可能であること、したがって、反強磁性体と強磁性体とで構成され る、いわゆるスピンバルブ系の界面観察などにも応用が可能であることが大きな特徴である。こ うしたイメージング手法は、装置、試料を超高真空中に保たなければならず、レンズ系に高電圧 を必要とすることから試料形状に対する制約があるなどの欠点もある。しかし、上述のように他 の磁気イメージング手法にはない特徴があり、多くの分野に適用が可能である。

1. 2 装置および原理、測定上の工夫について

光電子顕微鏡 (PEEM) は、光電子や2 次電子を拡大結像する装置である。試料の どの位置からの電子が多く放出されてい るか、実空間の画像として取得する装置で ある。図2に最も簡単な光電子顕微鏡装置 の模式図を示す。この装置は静電レンズを 用いて放出電子の拡大投影を行い、MCP で蛍光スクリーンを光らせるのに十分な 電子数まで増幅を行い、光ったスクリーン を CCD ビデオカメラで撮像する。この装 置では、試料と対物レンズの間に10~2 0kV程度の高電圧を印加し、いわゆる試 料をカソードとみなした電子レンズ系が 構成されている。この、一旦高圧に電子を 加速するカソードレンズ系を使っている ことで、低速な2次電子などに対する空間 分解能を上げる効果を持たせている。電子 レンズには3枚の電極を一組とした静電



レンズが用いられ、それらを組み合わせて、対物レンズ、中間レンズ、投影レンズを構成している。これらの電子レンズの組み合わせにより、拡大、投影を行っているのが図2の装置である。

図2の装置をさらに高度にしたものも開発されている²⁻⁶⁾。この装置では、静電レンズだけでな く、磁場を利用した電子レンズを組み合わせて顕微鏡としての動作を行っている。また、この装 置には電子エネルギー分析器が備えられており、たとえば PEEM 測定の際には微小領域の光電子 スペクトル測定や、光電子を用いたイメージングが可能になっている。また、電子銃も備えられ ており、低エネルギー電子顕微鏡(Low Energy Electron Microscope; LEEM)としての機能も持っ ている。PEEM の空間分解能は大体20~100nm の程度である。具体的な装置の性能や仕様 に関しては文献などで紹介されているので、参照していただきたい²⁻⁴。

次に、試料表面からの電子放出について解説する。

光のエネルギーをhv(単位は eV; h はプランク定数、vは、光の振動数)とすると、光電効果によって、物質から飛び出てくる光電子の運動エネルギーEk は、次の式で表される。 Ek=hv-E_B- ϕ -----(1)

ここで、 E_B は物質を構成する原子内に束縛されている注目している電子の束縛エネルギー、 ϕ は 仕事関数と呼ばれる表面障壁である。通常の固体試料で、仕事関数は、2~5 eV 程度の値をとり、 それは、試料の種類や表面状態に特有の値をとる。光のエネルギーとして紫外線~X 線領域の光 源を使用すると、そのエネルギーは仕事関数よりも大きいので、光電効果が引き起こされる。光 電子は、固体中から表面に移動し、さらに放出される過程において、そのエネルギーを他の電子 に与えたり、格子振動やプラズモンなどを励起したりするために使う。また、十分に大きなエネ ルギーを持った光電子は、他の電子を励起し、それがさらに他の電子を励起する、いわゆる雪崩 現象を起こしながら、数多くの電子(2次電子)を放出する。すなわち、光電効果によって励起 された電子のエネルギー分布は、(1)式での最大の値($hv-\phi$) eV から 0 eV までの幅を持って分布することになる。

図2のような簡単な装置の場合、励起光源として水銀ランプや重水素ランプを利用した PEEM 実験が行われている。光の中心エネルギーが4~5eVの紫外線領域にあるので、試料表面における局所仕事関数の空間分布に関するイメージを得ることができる。すなわち、仕事関数の小さい

較的広い観察領域の現象が、ビデ オレートで観測できる。又、放射 光を励起光として用いた場合に は、光の吸収確率が電子放出確率 に比例するので、吸収スペクトル の空間分布を測定することが可 能になってくる。光エネルギーを 特定元素の吸収端付近で走査し てやることで、試料における元素 分布や化学状態の情報を得るこ とができる。磁気状態観測のため には、1.3で紹介する磁気円2 色性、あるいは磁気線2色性と呼 ばれる効果と光電子顕微鏡を組 み合わせた観察手法が用いられ る。

領域からは電子がたくさん放出されるので、明るい領域として観測され、そうでないところは暗 い領域として観測される。通常、視野は数十から数百µmであり、十分な光束密度があれば、比



PEEM では上述のように、試料と対物レンズとの間に高電圧がかかる。しかもその間隔は数m mである。したがって、放電が起こりにくいようにするためと、像がゆがまないようにするため、 試料の表面は可能な限り平坦で、対物レンズと平行に配置することが望まれる。又、電子を結像 する手法であるため、チャージアップや漏れ磁場による像の歪も避けなければならない。そのた め、極端に絶縁性の大きな物質やバルクの磁石そのものの観察には不向きである。どうしても磁 場の存在する状況での観測をしたい場合には、薄膜試料を用いたり、磁気閉回路を構成するよう な試料ホルダーを工夫したりする必要が出てくる。図3に SPring-8 で実際に着磁した Nd 系の磁 石表面の観察を行った際に工夫した、磁気閉回路サンプルホルダーの模式図を示す⁷⁾。観察視野 は5μmから500μm程度であり、数mm~1cm四方程度の大きさの試料片に加工して試料 ホルダーに取り付けるのが一般的である。装置は超高真空に維持されているが、次節以降で述べ るように、吸収強度に比例した光電子放出現象(光電子収量、Total Yield)を観測するため、通 常の光電子分光ほどは表面の清浄度に気を配る必要はない。表面に付着したり、表面と反応した りした汚染物質によるチャージアップの影響を防ぐため、軽くアルゴンスパッタをする程度で十 分な磁区観察が可能になる。試料によっては、汚染やチャージアップを防ぐため、表面に数 nm 程度の金属薄膜による保護層を作成し、その下に埋もれた領域を観察することも可能である。

試料マニピュレータにクライオスタ ットによる冷却機構を採用したり、加熱 機構を付加したりすることも可能であ る。磁性体研究の場合、温度依存のデー タは重要であり、必要性も大きい。しか しながら、PEEM 測定の場合、温度変 化による試料位置のドリフトには非常 に敏感であるため、その機構にはドリフ トを最小限に抑える工夫、たとえば温度 制御の精密性などが求められる。 SPring-8 では、液体ヘリウムのフロー 方式のマニピュレータを使用している。 先端部でのヘリウムの気泡化が極力抑



えられる低振動タイプの Helitran と呼ばれるクライオスタットを導入している。流量の変動が極 カ小さくなるようにし、温度変動が0.2度程度の範囲に収まるよう、ヒータと組み合わせたフ

ィードバックを行っている。ただし、その分到達温度は60K 程度にとどまっている。より低い 温度で、ドリフトや振動なく測定できるようにするのが今後の課題である。また、光や電子線強 度を十分に大きくし、データ取得時間を短くすることでドリフトの影響を少なくすることも望ま れる。そのためにはビームの集光が有効である。ビームサイズを小さくすることで、狭い視野で の観測時間を短くできるメリットはあるものの、一方で、PEEMの特徴である、比較的広い範囲 の情報を一度に得るというメリットを捨てることになるので、注意が必要である。できることな らば、フォーカス位置でのビームサイズを、観察視野に合わせていろいろと変えてほしいという のがユーザーからの要望である。

走査型の顕微鏡ほどではないものの、振動対策にも気を配る必要がある。放射光施設の場合、 多くのポンプ類、空調設備からの振動には注意する必要があり、床面を振動源とは切り離したり、 除振台の上に装置を設置したりするなどの対策がとられている。又、空調の影響を避けるために、 装置をテント状のカバーで覆うなどの対策も有効である。マニピュレータは、PEEMの対物レン ズと正対するような方向から挿入するほうが、振動や温度ドリフトによる影響を抑えることが容 易である。対物レンズと試料ホルダーが一体構造となり、仮に振動が存在したとしても PEEM と 試料が同じ位相で振動するような構造をとっている装置もある。

1.3 磁気円2色性と線2色性

放射光と PEEM を組み合わせて磁気イメージングを行う際には、磁気2色性という現象を利用 する。特に、放射光を用いた場合、内殻吸収端付近での2色性を利用することで、元素選択的な 磁気イメージングが可能になるというのが、大きな特徴である。

一番よく使われるのが、磁気円 2 色性(magnetic circular dichroism; MCD)であり、この詳細は 別の解説書⁸⁻¹¹⁾などを参照していただくことにして、ここでは割愛する。

今、PEEM と MCD を組み合わせて磁気状態観察を行うことを考えてみる。図4に示すような 磁気モーメントを持つ領域(磁区)での MCD においては、①と③の領域に大きな吸収強度差が生じ る。このコントラストを捕まえることで、元素選択的な磁区観察が可能となる。吸収強度は光電 子の放出量に比例するため、③の領域は明るく観測され、①は暗くなり、②と④はその中間のコ ントラストを与える。MCDのコントラストは磁化の光の入射方向に対する射影成分に比例する。

このことから分かるように、光の入射方向を変 えながら測定すれば、個々の磁区のモーメント の向きを決定することも可能である。実際の測 定では、遷移金属の L吸収端を使う場合、Laで 光エネルギーを固定し、左右円偏光を切り替え たときに得られるイメージの差分(あるいは割り 算した結果)をとるか、あるいは円偏光のヘリシ ティは固定で、Laと L2の2箇所でイメージング を行い、その差分をとることで、試料のトポグ ラフィックな影響を抑え、磁気状態のみの画像 を得ることも可能になる。

磁気円2色性を利用した磁気イメージングで は、さらに大きな特徴として、磁気モーメント の定量評価が可能である点が上げられる。遷移 金属の L 吸収端では磁気光学総和則が成り立つ ことが知られており、それは、以下のような式 で与えられる。(σ はそれぞれの偏光の向きに応 じた吸収スペクトルの強度である。)



$$< Lz >= 2n_{h} \frac{\int_{L_{3}+L_{2}}^{\sigma^{+}-\sigma^{-}dE} - \sigma^{-}dE}{\int_{L_{3}+L_{2}}^{\sigma^{+}+\sigma^{0}+\sigma^{-}dE}}$$
(2)
$$< Sz > + \frac{7}{2} < Tz >= \frac{3}{2}n_{h} \frac{\int_{L_{3}}^{\sigma^{+}-\sigma^{-}dE - 2\int_{L_{2}}^{\sigma^{+}-\sigma^{-}dE}}{\int_{L_{3}+L_{2}}^{\sigma^{+}+\sigma^{0}+\sigma^{-}dE}}$$

すなわち、軌道磁気モーメントおよびスピン磁気モーメントの期待値、<Lz>、<Sz>は、MCD 吸収スペクトルにおける、La成分とLa成分の大きさの差が分かれば求まることになる。但し、nh

はホール数、< Tz>は磁気双極子である。 これらの*nb、<Tz*>の値は厳密に求めるこ とも不可能ではないが、通常はそれぞれ既 知の値(d電子の場合、10-d電子の数)、 0として取り扱うことが多い。詳細は9-10 に掲げた各種文献を参照していただきた い。この総和側を用いて、磁気モーメント の空間分布をPEEMによってマッピング した例も報告されている12)。文献12の研究 では、NiやCoの膜厚に応じた容易磁化軸 の回転現象を研究するために、2 重楔形2 層膜Co/Ni/Cu(001)を試料として用意し、 Co、Niの各膜厚での磁気モーメントの空間 分布を測定している。

2

磁気円2色性と似た現象で、磁気線2色 性(magnetic liner dichroism; MLD)¹³⁾も



— (3)

磁気状態のイメージングに用いられている。図5にその実験配置を示す。図では、試料に s 偏光 が入射されている。励起光の偏光ベクトルと、試料内の磁気モーメントのなす角度θに対し、MLD の大きさは $3\cos^2\theta - 1$ に比例して変化することが知られており、図の場合では①と③が同じ強度 で、②と④がそれらに対するコントラストを与えることになる。磁気モーメントの2 乗に比例し た大きさを持つことも知られている。(ただし、最近の研究では ¹⁴⁾、MLDの大きさがこの式に 比例せず、結晶の対象性を考慮しなければならない例も報告されている。これに関しては後述す る。) MLD を利用した場合、磁気モーメントと偏光のなす角度に依存することから図の(a)に示す ような反強磁性体の磁区観察にも応用可能な手法である。MLD は強磁性体に関しては MCD と比 べるとかなりコントラストが小さくなるので、磁区観察に応用された例は、わずかしかない¹⁶⁾。 しかし、反強磁性体の磁区観察が可能であるという他の手法にはない大きな特徴を備えているた め、いくつかの興味深い研究例が報告されている。

直線偏光を用いた別の実験配置によっても2色性が生じる例も報告されている。これは、我々 が BESSY-I における実験で見出した現象で、そのいきさつについては後述する。その実験では、 図6に示すような実験配置、すなわち、Transverse 配置の Kerr 効果観察と同様の実験配置で、 鉄の M吸収端における2色性が生じることが発見された¹⁵⁾。実際にその効果を用いた PEEM に よる磁区観察も行った16-17)。

以上のように、放射光を利用した磁気2色性を用いた PEEM による磁区観察では、強磁性体の みならず、反強磁性体への応用が可能であり、しかも元素選択的にその情報が得られるという大 きな特徴がある。軟X線領域には多くの遷移金属のL吸収端、希土類金属のM吸収端が含まれ ており、磁気2色性の信号強度も大きいことから多くの実験がなされている。一方、硬 X 線領域 では、磁気2色性の強度が小さいというデメリットも存在するが、表面からより深い領域まで X 線が侵入し、しかも放出する2次電子が物質内部数10nm の情報を保存して出てくることが調 べられており¹⁸⁻¹⁹⁾、埋もれた界面の研究を行うのに適している。可視光領域と違い、放射光で偏 光を制御するためには若干の工夫を要する。軟 X線領域では広い波長範囲を1枚の光学素子でカ バーできる適当な位相子が存在しないため、光源そのものが円偏光、あるいは直線偏光を発生す るようなビームラインで実験を行う。通常の偏向電磁石から発生する放射光の場合、電子軌道面 内の光は直線偏光であるが、軌道面から上下に外れた方向で放射光を取り出すことで、楕円偏光 を利用することが可能である。又、直線偏光や円偏光を発生する特殊な挿入光源(アンジュレー ター)も開発されており、輝度の高い軟 X線の利用が可能になっていて、顕微鏡的な観測には最適 である。又、硬 X線領域ではダイヤモンド結晶を利用した位相子¹¹⁾が開発されており、円偏光 の発生のみならず、直線偏光の偏光面の制御も可能となっている。これら、放射光の偏光のハン ドリングに関しての詳細は文献 20 を参照していただきたい。特に、SPring-8 の BL25SU では、 左右円偏光の高速スイッチングが可能なアンジュレータービームラインとなっており、効率的な PEEM による磁気状態観察が行われている。後述するように、我々の PEEM 研究も、光源にお ける偏光の質が上がるにつき向上してきた。我々自身の PEEM による磁区観察も、まさしく光源 の偏光の質によって左右されてきたと言える。

2. 放射光施設と光電子顕微鏡装置

上で述べたように、放射光の偏光特性を利用しつつ、PEEM を用いて磁区観察を行ってきたわけであるが、初期の実験の様子からその後の発展までを本章で紹介する。この手法は、放射光の 光エネルギーの可変性、高輝度特性、偏光特性、後述する時間分解測定ではパルス特性をも利用 する。いわゆる教科書で紹介されている放射光の特徴のすべてを利用する実験である。

2.1 初期の放射光光電子顕微鏡による磁区観察(BESSY-I での実験)

PEEM と放射光による XMCD を利用した磁区観察は 1990 年代の初め頃にスタンフ ォードの放射光施設のグループ によって最初のデモンストレー ションが行われた²¹⁾。彼らは CoのL吸収端におけるXMCD を利用して、ミクロンメートル サイズで書き込まれた磁気記録 の様子を観察した。この時彼ら が用いたのは偏向電磁石からの 放射光で、電子軌道面から外し た光軸の光を集光することで得 た円偏光放射光である。偏光度 は約90%と報告されている。



筆者が最初に PEEM と放射 [|]

光による磁区観察に挑んだのはその報告の翌年のことである。当時筆者はデュッセルドルフ大学の研究員として応用物理学科の Erhardt Kisker 教授の研究室に在籍しており、スタッフの Dr. F. U. Hillebrecht*や大学院生数名(Dietmar Spanke、 Johan Dresselhaus、 Holger B. Rose、 Chlothar Roth ら)とともに、STAIB 社の PEEM 装置を、現在は閉鎖されているベルリンの放

^{*}我々の PEEM による磁区観察の共同研究者でいろいろと示唆をいただいた Hilleberecht 博士は 2006年8月6日に逝去された。

射光施設 BESSY-I (図 7)に持ち込んだ。(現 在 稼 働 し て い る BESSY-II は、ちょうど 建物の基礎工事が始ま ったばかりであった。) 利用したビームライン は U2-FSGM と呼ばれ るアンジュレーター光 を利用するビームライ ン 22 である。ここには、 Crossed Undulator と



呼ばれる、縦横の直線、円偏光を供給可能というふれ こみの装置が設置してあり(図8、図9)、分光器は Focused Spherical Grating Monochromator という、 当時非常に高いアクティビティを誇っていたビーム ラインであった。ビームラインには専有の測定装置は 備えられておらず、ヨーロッパ各地(主にドイツ国内 ではあるが)、からユーザーが固有の装置を持込、そ れをビームラインに接続し、超高真空に排気して利用 を開始する、という非常に手間をかけてデータを得る システムになっていた。グループでは、普段研究室で 整備していた、スピン分解光電子分光装置と、PEEM の装置の2セットを大学所有のトラックに積み込み、 技術職員に依頼して片道15時間以上の道のりの装 置の移動をお願いした。我々は電車でベルリンに先回 りをし、到着した装置をおろし、ビームラインへの設 置作業を行った。ベーク排気や配線作業など数日をか けて、放射光を装置に導入したものの、最初はどのよ うにして光を適正な位置に合わせるか、全く手探りの 状態であった。市販の PEEM 装置は水銀ランプを光



源としている。水銀ランプの場合は集光をしてもスポットサイズは大きく、2次電子の放出強度 が大きくなるように合わせるのもさほど困難ではない。しかし、放射光ビームの場合はそのサイ ズは小さく、2次電子の放出強度も弱い。視野が数十〜数百µmのPEEMの対物レンズの真下に、 しかもフォーカス位置にビームを合わせるのはかなり難しい。当時の装置にはモータードライブ によって架台の場所を変化させる位置調整機構もついておらず、最初にPEEMの検出器で2次電 子信号を得るまでには多大な時間を必要とした。当時の放射光ビームは、現在の高輝度光源のそ れと比べると比較的大きなサイズであり、しかも装置の位置もフォーカス点に置かれていたわけ でもなかったために、なんとか位置合わせをすることができた。また、U2-FSGM ビームライン はゼロ次光を出すこともできたため、通常の分光光よりも約2桁大きな2次電子強度を得ること ができた。最初はゼロ次光を利用することで、まずビームの裾の部分からの2次電子をなんとか 探し出し、チャンバー位置を少しずつバールで押し、あるいはハンマーで叩きながら調整して最 終的には分光光に対しても2次電子のイメージングが可能な場所にまで装置位置を調整した。

この時のビームタイムでは、放射光を用いた PEEM のイメージングには成功したものの、磁区 像を出すまでには至らなかった。それは、以下に述べるように、MCD コントラストが非常に低 い条件にあったためである。第一には、このビームラインのカバーするエネルギーが低く、MCD 効果を狙った領域が遷移金属の L吸収端ではなく、M吸収端であったことである。当時、M吸収 端の MCD は、既に小出ら²³⁾ によって報告されていた。しかし、L端のそれと比べ、非対称信号
は弱く、また、M2とM3が分裂していないため、どの光エネルギーでコントラストが大きくなる のか、実際に測定してみるまでははっきりしたことが言えない状況であった。また、PEEMの場 合は通常の MCD 測定と比べ、必然的にビームを射入射配置にする必要がある。これにより、反 射が大きな配置となり、明瞭なピーク構造は見えず、構造はよりはっきりしないものとなる。さ らに、M端の場合には光の侵入深度が浅く、表面敏感な信号しかえることができない。当初用い た鉄表面は、おそらくさほど清浄ではなかったものと推察され、それも原因となった可能性があ る。

最後にこのビームラインの Crossed Undulator そのものの問題がある。図8に示すように、このアンジュレーターは、通常の Planar Undulator を 90 度回転したもので縦方向の偏光を供給 し、通常の Undulator で横方向の偏光を供給する仕組みになっている。2つのアンジュレーター

が並んでおり、そのあいだには 位相コントロール用の磁石列が 配列されている。しかし、この ビームラインにおいて、円偏光 度は、通常50%程度であり、 その低さによっても最初の段階 で磁区観察を行うことはできな かった。結局このタイプのアン ジュレーターは BESSY-II では 採用されないこととなったが、 その後 SPring-8 の田中隆次氏 らによって東大ビームライン BL07LSU²⁴⁾において、改良した 形で実現している。BL07LSU では90%以上の円偏光度が実 現されている。

この時のビームタイムでは、 PEEMによる磁区観察をあきらめ、スピン分解光電子分光装置にセットアップを入れ替え、鉄 薄膜のスピン分解光電子分光とともに、*M*吸収端での磁気2色 性の測定を行った。またスピン 分解光電子分光の装置では、

MLDAD(Magnetic Lenear dichroism in Angular Distribution)と呼ばれる角度分 解光電子分光において内殻電子 スペクトルに現れる2色性²⁵⁾の 精密実験を行っており、ためし にその同じ実験配置の吸収スペ クトルで2色性があらわれない かどうかを確かめたところ、図



る磁区像。円偏光、通常のMLD配置、図6の配置で測定したもの。四角で囲った領域のプロファイルも示した。 $s \ge p$ 偏光の場合は図6の2色性が最大になる52と55eVにおける二つの画像の差分。円偏光の場合は55eVに対する左右円偏光の像の差分を取った。視野は300 μ m。

6のような2色性が観測できた次第である。この現象は我々も、全く予想しておらず、当時の国際会議でも疑いの目で見られたが、結局半年後のBESSY-Iにおけるビームタイムで再びPEEMによる磁区観察に再度挑戦し、見事に成功した。図8を見ればわかるように、このアンジュレーターでは、末端の装置やサンプルを動かすことなく、s偏光(図でHorizontal Fieldのアンジュレーターのみを使う)とp偏光(Vertical Fieldのアンジュレーターのみを使う)の切り替えを行うことができ、精度に関しての確信を持つことができた。図6の配置のほか、通常のMCDやMLD

配置での磁区観察にも成功し、偏光の向きと磁気モーメントの向きの関係から、磁区内の磁化方向のアサインにも役立つことを実証した¹⁷(図10)。どのような実験条件で2色性が大きくなるのかを調べていたために可能になったわけで、その結果は無事 Physical Review Letter 誌に発表され¹⁶、研究グループの皆で大いに喜んだ。

2.2 国内での放射光を用いた最初の磁区観察 (PFでの実験)

筆者はドイツ留学の途中から分子科学研究所に赴任することとなった。そこでは光電子顕微鏡の機能は備えてはいるものの、エネルギー分析を重点的に行い、空間分解能はあまり重視しないタイプの装置を導入し(VG社製 ESCALAB)、いくつかの予備的な磁区観察を行ったものの²⁶、本格的な研究には至らなかった。

 1998年に東京大学物性 研究所に赴任することとなり、 当時の神谷幸秀施設長から何 か新しい装置を導入してはど うかとの打診があった。当時 は物性研の六本木から柏への 移転に伴う予算が手当てされ ていたようである。筆者の所属 していた軌道放射物性研究施 設では、柏に新しい高輝度放射 光施設建設を計画しており、そ のため、軌道放射研究施設への 装置整備の予算は、他の研究室 に対するものに比べると大き なものではなかったが、今後の 高輝度放射光の特性を生かし た研究ということを考え、ドイ ツ留学中に経験を積んだ PEEM を導入することにした。 東大工学部の尾嶋正治教授に も共同研究を進めることをご 快諾いただき、尾嶋研究室の小 野寬太助手(現 KEK-PF 准教 授)や修士学生の木原隆幸氏、 また私のグループに助手とし



て加わってくれた奥田太一氏(現広島大准教授) らと装置の開発を進めた。また装置が立ち上がっ てからは、東大の松島毅氏、尾嶋研究室の木綿秀之氏、千葉大学上野信雄研究室の遠山尚秀氏ら の修士学生と研究を進めた。また、のちに博士研究員の脇田高徳氏、孫海林氏も加わった。

PEEM 本体は手当てされた予算で、ドイツ時代に使っていたものと同様 STAIB 社のものを導入することにし、さらに、微小領域の光電子分光が可能な CMA 光電子アナライザーを備え付け

たものとした。 施設の維持費 を利用して、チ ャンバーの設 計製作は行う ことができた が、架台やポン プなどは、東大 工学部、SOR リングなどで 眠っていた古 いものを再利 用して、図11 に示すような 装置を組み上 げた。この装置 の設計で注意 したことは、将 来の応用を考 えて、光電子ア ナライザーを 備えたものに すること、振動 を防ぐため空 気ばね式の除 振台に載せた こと、温度を冷 やせるようク ライオスタッ トの取り付け の余地を残し たこと、様々な サンプルに対 応できるよう に試料準備チ ャンバーを設 けたこと、 **PEEM** の性能 を極力落とさ ないようにす



図13 東大物性研で組み上げた PEEM 装置の写真。

るために、漏れ磁場の影響を考慮し、イオンポンプを PEEM 本体からもっとも離れた位置に置い たこと、PEEM の場合には、レーザー照射、金属蒸着に伴う表面変化観察などの実験が想定され るため、サンプルを見込める多くのポートを備えた球形チャンバーとすることなどであった。ま た、図10で示したように様々な偏光を利用することは有用であることが BESSY-I での実験でわ かっていたので、その利用のことを考え、p偏光、或いはs偏光双方に対する観察が可能なよう にするため、チャンバーを回転して、図12のような配置でも測定が可能なようにした。

実際に組み立てた装置の写真を図13に示す。放射光を使わず水銀ランプで測定した際の空間 分解能は約60nmであった(図14)。 上述のように、本装置ではいろいろな拡張性の可能性を考えた設計を行ったが、実際つくばの

放射光施設 PF では1回のビームタイムが2週 間程度であり、3つほどの軟X線ビームライン に装置を運び込み、セットアップ、ベーク排気 を行いながら実験を進めたため、たとえば光電 子分光の機能や図12のような測定配置にお ける実験を行うチャンスはほとんどなかった ことが反省点である。偏光条件を様々に変えた 実験は、後に SPring-8 の PEEM 装置で実際に 行われるようになり、成果が出ている。ただし、 これは装置の回転ではなくアンジュレーター 光源で様々な偏光の光を作り出すことができ るというメリットを使った実験になっている。

PF では、この装置をいろいろなビームライ ンまで移動し、数日かけてセットアップ、ベー ク排気を行う作業を経て、ビームタイムを利用 した実験を実施した。

PF での最初の実験は BL-11A²⁷⁾で行った。 ここは、偏向電磁石からの光を利用する軟X線



ビームラインであり、不等間隔刻線平面回折格子分光器が供えられている。図15にビームライ ンの模式図を示す。この図のフロントエンドスリットSOを軌道面よりも上方の光のみをビーム ラインに通すように調整し、M0 'の傾きを調整することで、円偏光度がそこそこ高く、なおか つ光束密度も PEEM による MCD イメージが可能なだけ来るような調整を行った。 円偏光度はは



定などは行っていない。また、左右円偏光のスイッチングも、S0を動かしてビームライン全体 の再調整を要するため現実的ではない。従って、磁区観察の際には、図16上で示すL吸収端の スペクトルのうち、L3の画像と、L2の画像の2種類を取り、前者で後者を割り算する処理を施 すことで、トポロジカルな情報を極力小さくし、磁気コントラストを強調することで、像を得た。 図16の下で示すのがそうして得た鉄単結晶表面の磁区コントラストである。このビームライン では1枚の画像を得るのに通常30分ほど要した。

PF ではそのほか円偏光を利用した PEEM 実験のために、アンジュレータービームライン BL-28A も利用した。ここでは、円偏光の利用が可能であるが、光のエネルギーは遷移金属のM 端付近に限られている。先の BESSY の実験のところでのべたように、表面の清浄度に敏感であ るため、清浄表面以外のサンプルの磁区観察にはあまり適していていない。しかし、図10の左

上の図のようなイメージの取得には成功した。結局、その後メゾスコピックドットの磁 区観察を主体に研究を進めることとなり、サ ンプルは電子線リソグラフィーとリフトオ フを組み合わせた手法で制作することにな る。表面の清浄化はあまり簡単に行うことは できないため、円偏光を用いた PEEM 観察 は、主に BL-11A で行うこととした。

反強磁性体の磁区観察に関しては、ドイツ 留学時代に一緒に仕事をした Hilleberecht が、NiO の磁区観察に関して先駆的な仕事 をしていた²⁸⁾。我々が PF で装置を立ち上 げた後、彼も来日して共同研究を進める機会 があり、NiO のみならず、Mn酸化物など いろいろなサンプルの磁区観察の可能性を 試みた。ビームラインは当初アンジュレータ ービームライン BL-13C を用いた²⁹⁾ PF に はもう1本、遷移金属のL端をカバーできる アンジュレーターライン BL-2C がある ³⁰⁾。 しかしこちらのビームラインは性能が高く、 ユーザータイムを取得することが難しかっ た。初期の申請ではなかなかビームタイムが 配分されず、我々は PEEM でいくつかの実 績を上げてから BL-2C でのビームタイムを 獲得することができた。



ビームタイムを して観測されている. 視野は 100 µ m。



2C、 13C とも 98%を超える純度で直線偏光を供給するアンジュレーターを光源とし、輝度

が高い。また遷移金属L端をカバーしており、反強磁性サンプルの研究には適していた。一方、 輝度は高いものの、スポットサイズに対してはあまり要求がなかったようで、しかも我々の装置 もフォーカス位置に設置することは難しかったため、実際には数mm程度のサイズに光が広がっ ていることもあった。また、我々のような顕微鏡実験は想定されていなかったため、波長を走査 するために回折格子を回転すると、サンプル位置で光の場所がずれていく現象も観測された。数 十から数百μm程度での視野内での観測を想定していなかったためであり、第3世代ではない光 源のデメリットを感じた。

とはいうものの、BL-11A、2C、13C ビームラインからは、後述するようないくつかの成果を 発表することができた。

2.3 SPring-8 における PEEM

2005年に筆者はSPring-8に転任した。その2年ほど前からSPring-8では、当時のナノテ クノロジー支援プログラムによって装置の導入が小林啓介博士を中心に進められており、2台の PEEM 装置の整備が始まっていた。詳しくは文献2と3を参照していただきたい。実際には担当 スタッフの脇田高徳、郭方准博士らによって装置の整備がすすめられ、その後担当スタッフは福 本恵紀氏を経て現在は小嗣真人、大河内拓雄博士らとなっている。また、私の東大時代の最後の 学生である新井邦明氏も、研究生として、SPring-8における PEEM 実験に参加した。

なんといっても SPring-8 における PEEM の特徴は、光源が高輝度であり、かつ安定している こと、また軟X線領域の純度の高い偏光が、アンジュレーターで利用可能なことである。

SPring-8 に導入された PEEM は ELMITEC 社製の2台の装置である。一つは、 PEEMSPECTOR と呼ばれる静電レンズのみを使った簡易型のものであり(図17)、基本的に は図2のものとよく似た構成になっている。もう一方は SPELEEM と呼ばれる装置で、磁場レン ズをも組み合わせ、さらに光電子アナライザーや電子銃も備えられており、高空間分解能や電子



のエネルギー分析による光電子ス ペクトル測定、さらには LEEM の 機能も併せ持った装置である。放射 光ビームの形は楕円形であるので、 それを有効に利用するため、 SPELEEM 装置のほうでは、通常 の市販タイプが水平面内に配置さ れているものを90度回転し、垂直 面内に装置が並んだ形となってい る(図18)。また、上述したよう に、磁区観察のためには偏光と磁気 モーメントのなす角度を変えなが らの測定が重要になるため、サンプ ルの方位角回転ができる仕掛けを 備えている点が特徴である。 PEEMSPECTOR のほうは、本体 が非常に小型で扱いやすい。チャン バーは PF の小野寛太博士らが開 発したものと同様のものが導入さ れている(図17)。双方の装置と



も架台の位置を調整するために、水平、垂直方向のステッピングモータによる送り機構がついて いる。高輝度光源の小さなビームを、装置の適正な位置と合わせるためには必須であり、現在で は多くのユーザータイムで、像を出すまでの時間が数十分以内で可能な状態になっている。

筆者が SPring-8 に移動してきて、一 番恩恵を受けている のが、偏光度の高い 高輝度軟エックス線 が利用できている点 である。図18の装 置は、当初 BL27SU³¹⁾というビ ームラインで立ち上 げ調整が行われた。 ここでは、8の字ア ンジュレーターと呼 ばれる挿入光源から の高輝度軟X線が利 用可能で、特に、縦 横の直線偏光が利用 可能である。ここで、 後述するような NiO の反強磁性磁区観察 を行った。27SU に おける実験は Temporary なもので、 集光位置にチャンバ ーを置くことができ



図20 BL25SU のツインヘリカルアンシュレータと円偏光を切り替 えて PEEM を測定する際の模式図。2台のアンジュレータの中心をと おる電子軌道をキッカー電磁石を高速で切り替えることにより、交互に 左右円偏光の利用が可能である。そのタイミングに合わせて左右円偏光 それぞれで撮像したデータをコンピューターに独立に貯め込み、処理す る。 なかったため、毎回像だしに時間がかかり、しかも撮像時間が長く効率が悪かった。大阪電通大 学の越川孝範、安江常夫研究室とJAEAの斉藤祐司博士らの尽力により、当時建設がなったばか りの理研ビームライン BL17SU³²⁾に集光ミラーシステムが導入された。このシステムにより、サ ンプルの照射領域が半値幅で20µm程度に相当する集光が実現でき、測定の効率が飛躍的に向 上した。また、このビームラインでは、図19に示すようなアンジュレーターが光源として備え られており、楕円偏光の利用が可能である。楕円率やその軸をいろいろ変えることができるため、 実質、縦横直線偏光や円偏光が利用できるのと同様の効果があり、磁区観察にとって大きなメリ ットとなっている。偏光度は70~90%である。

一方、PEEMSPECTOR を設置した BL25SU³³⁾は、円偏光を利用するビームラインである。こ こには、北村英夫、原徹博士らをはじめとする挿入光源グループの尽力により、2台のヘリカル アンジュレーターがセットされており、左右円偏光(偏光度は95%以上)の利用、さらには左 右の切り替えが、0。1、1、10Hz でできるようになっている(図20)。このビームライン は2013年12月までで運用を中止し、現在は新たにマイクロビーム、ナノビームを利用する ビームラインに生まれ変わろうとしている。担当の中村哲也、室隆桂之博士をはじめとする多く のスタッフの協力により、性能が発揮できるビームラインであった。円偏光の切り替えに同期し たデータ取得のダイヤグラムも図中に示してあるが、この仕掛けは松下智裕博士の開発によるも のである。切り替え周波数は PEEM 測定の場合は0.1 Hz を使用している。これは、CCD カメ ラにデジタルデータを貯め込む際に、余り短い時間で十分にそのビット数を使わないまま、次の データを貯め込んでも、(フルレンジのごく一部しか使わないまま)結局 S/N が上がらない事情 による。即ち、同じ時間露光した際には1Hzや10Hzでは十分な S/N を得ることができないた め、0.1Hzを用いた。円偏光を切り替えることで、左右円偏光に対するそれぞれのデータセッ トを同時進行で得ることができる。これは非常に大きなメリットで、通常のどちらかの偏光に対 するデータを取得したのち、もう一方のそれを取ってから差分を得る方式に比べると、時間的な サンプルのドリフトの影響を格段に抑えることができる。また、測定しながら、磁区の観察がた ちどころに行えるため、実験条件の最適化の時間短縮も行うことができる。この装置を用いるこ とで、PFで30分ほどかかっていた磁区像の取得が、数秒~数分で可能になった。

3. 放射光と光電子顕微鏡を用いた磁区観察 の具体例

放射光を用いた PEEM では、元素選択的で あること、空間分解能も100nm をきること、 MFM などのように磁場が試料にかかる恐れ がないことで軟磁性体の磁気状態観測にも有 効なこと、放射光がパルス光であることなど の特長を生かした研究が進んでいる。1.3 で解説したように、光の入射方向と磁気モー メントの方向によって、コントラストを変化 させる観察手法であり、面内の磁化を持つよ うな試料に対して多くの応用例がある。しか し、PEEM の場合、光の入射方向は試料に対 して斜入射といえどもある角度を有しており、 面直磁化に関してもコントラストを得ること



が可能である3。以下、我々が行ってきた磁区観察の例を紹介する。

3.1 強磁性体の観察

最近、次世代磁気記録方式への応用を目指し、パターンドメディア開発につながるメゾスコピ ックサイズの磁性体の磁区観察および、外部磁場に対する磁化反転の様子が観察されるようにな っている³²⁻³⁷⁾。これは、MFM と異なり、面内磁化に感度を持った観測方向であること、又、探針 などの影響に依る磁化反転が起きないこと、Kerr 顕微鏡よりは空間分解能が良いことのためであ る。我々は、PF における最初の実験として、尾嶋研究室と共同で図21に示すようなドット磁石 の磁区観察を行った。ビームラインはBL-11A を用いた。サンプルは電子線リソグラフィーとリフ トオフの手法を用いてNTTの横尾篤博士に作成していただいたものである。図には10 μ サイズ のパーマロイドットの内部磁区を観察した様子と、Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式

$d\mathbf{M}/dt = -\gamma \mathbf{M} \mathbf{x} \mathbf{H}_{\text{eff}} - \alpha / \mathbf{M} \mathbf{s} \cdot \mathbf{M} \mathbf{x} (\mathbf{M} \mathbf{x} \mathbf{H}_{\text{eff}}) - - - (4) \quad \mathbf{x}$

(ここでγはgyromagnetic factor で α は damping parameter である。)

に基づくコンピューターシュミレーション 00MMF ³⁸⁾を用いてその磁区を再現した様子を示した。 このように小さなサイズのドットでは、ドットのふちに沿って磁気モーメントが配置され、全体 として回転し閉じることでエネルギーの安定化が図れる。中心では渦の吹き出しが起こり、紙面 とは垂直方向の磁化を持つ。このような磁区構造をフラックスクロージャードメイン (Flux closure; FC)と呼ぶが、図の三角形では角が急なために、磁化のスムーズな回転が起こりにくく、 FC はできていない。渦の吹き出しが起こらないようにリング型のドットを作成し、その磁区観察 や、外部磁場による磁化反転の様子を観測した例も報告した^{36,37)}。FC だけではなく、オニオン形 と呼ばれる磁壁が 2 つ存在する磁区構造の存在も見出されている。

これらの経験を踏まえ、SPring-8 ではより空間分解能が高い実験が短時間で行われるようになっている。実際のデバイス開発へ向けた取り組みも行われている。 MRAM への応用をめざし、 U 字型のパーマロイドットを作成し、外部磁場を与えることで、所望の磁化反転が起こるかどう かが観察されている³⁹⁾。高速磁化反転を実現するため、磁壁移動型の素子としての働きを期待し、 形状に依存する反転確率の基礎的な研究を行った。MFM ではその探針からの磁場でスイッチン グが行われ、真の状態が把握できないが、PEEM による観測で可能になった研究である。

このようなメゾスコピック磁性体の磁化反転の研究は、その動的特性を知ることも重要であり、 その時間分解実験に関しては後述する。

磁性材料の開発に PEEM による磁区観察を役立てようという試みも始まっている。最近の環境 問題への関心の高まりから、より高い変換効率をもつトランス開発や、ハイブリッド自動車、電 気自動車における高効率のモーター開発の必要性がそのバックグラウンドにある。日本は強力な ネオジ系磁石の開発で世界をリードしているが、自動車のエンジンルーム内などより過酷な環境 下での効率のよい磁石の開発が求められている。より性能のよい強力磁石の開発を目指し、熱消 磁状態のネオジ系(NdFeB)磁石の磁区観察が行われている⁴⁰⁾。ネオジ系磁石は非常に強力である ため通常 PEEM 観察は不可能である。しかし、消磁を行い、表面も研磨によって非常にフラット な状態を実現し、観測に成功したほか、図3のような磁気閉回路を用いての実験によって、磁石 としての機能を持った状態での観測も可能となった7。

3.2 反強磁性体の観察

1.3で紹介したように、PEEM と MLD を組み合 わせることで、反強磁性体の磁区観察ができるという 点が、大きな特徴となっている。反強磁性体は、交換 バイアスを応用して磁気記録を行うシステム(スピン バルブ)の、スピンをピン止めするための基板として 利用されている。残念ながら、実際に応用されている Mn 系の反強磁性物質のかなりのものは、いわゆる 3Q という3角格子内での反強磁性秩序を示すタイプの ものであり、ドメイン内の磁化が偏光ベクトルに対し て平均化された形となってしまい、MLD が現れない



ため、磁区観察は不可能である。しかしながら、ドメイン内での磁化が Collinear に配列したタ イプの反強磁性体に関しては、様々な研究が進められてきている。Scholl ら ⁴¹⁾が、LaFeO₃に対 する反強磁性磁区構造の観察に成功した後、いくつかのグループが典型的な反強磁性物質である NiO に対する研究を行っている ^{28, 42)}。

図22にNiOのNiサイトの結晶構造を示す。 NiO はネール温度が523K の反強磁性体で あり、1枚の(111)面内にスピンが強磁性配列し、 隣り合う(111)面同士が反強磁性的に逆方向の スピン配列を持つ構造をとっている。この反強 磁性相互作用のため、(111)面同士が引き寄せら れ、結晶はこの方向に歪む。この結果、双晶 (Twin) が生じることになる。全部で4種類 の<111>方向があるため、この Twin に由来 するドメイン(T-domain)は、4種類存在する。 (111)面内には3方向のスピン容易軸<112>が 存在する。したがって、1 つの T-domain 内に は3つのスピンドメイン (S-domain) が存在 するので、全部で12種類のドメインが存在す る。これまでに光学反射 43)、X 線トポグラフィ ー44)などいくつかの手法でドメイン観察が行 われてきている。

PEEM によってこの反強磁性ドメインを観察するためには、NiのL吸収端で観測される
MLD を利用する。図23b)にその吸収スペクトルを示す。文献23、42に示した研究では、
図中矢印2本で示した、L2吸収端における
MLD 効果を用いてドメイン観察を行っている。



すなわち、2箇所の光エネルギーで光電子イメージを取り、その差分、あるいは割り算を行って、 反強磁性ドメインを強調する手法である。我々は当初 PF の BL-13C で Dr. Hillebrecht や、尾嶋 研究室の協力でこの研究を開始し、後に PF の BL-2C、 SPring-8 の BL27SU、17SU の直線偏 光を用いて研究を継続した。

我々はまず、NiOに関して、NiのL吸収端を用いれば、スピンに由来するドメイン(S-domain) の情報が得られ、酸素の K吸収端(図(a)中AとBの位置でのイメージの差分)を用いると、反 強磁性歪に由来する情報(T-domain)が得られることを新たに見出した⁴⁵⁾。NiOの結晶構造を 考えると、O 原子の周りには 3 つずつの上向き、下向きスピンを持つ Ni 原子がそれぞれ配置し ており、酸素の周りにはモーメントは誘起されない。しかし、反強磁性歪に由来する異方性から このようなドメイン構造が観測されているものと考えられている。このことは、鉄薄膜を蒸着し た NiO で、酸素の吸収端によるイメージはさほど影響を受けないのに対して、Ni の吸収端のイ メージは、影響を受けること、また、酸素吸収端のイメージのコントラストは4種類で、T-domain の種類と同じ数であるのに対し、Ni吸収端のイメージのコントラストは複雑で数多くの種類のド メイン、すなわち S-domain の情報を反映していることが示唆された。当初 PF で始めた観察実 験も、SPring-8 での実験では、コントラストや分解能が向上し、イメージの質は目覚ましく向上 した。そこで、我々は、観察された磁区内部の磁気モーメントのアサインに挑むことにした。上 に述べたように、典型的な反強磁性物質である NiO の磁区観察は、半世紀ほど前から始まってい る。しかし、磁区は見えてもその内部の磁気構造に関する詳細な報告はなされていなかった。1. 3で述べたように、MLDの大きさは偏光ベクトルの向きと、磁気モーメントのなす角θに対して 3cos² θ ·1 に比例することが知られている。そのため、試料を光の入射方向に対して回転させなが らイメージを取り、そのコントラストの変化の様子を詳しく調べれば、ドメインの磁化方向の決 定が可能であると期待されていた。

しかし、実際に、偏光に対してサンプルを回転し、その磁区観察を行い、コントラストの変化 を解析してみると、存在しうる磁化方向とは矛盾する結果しか出てこず、しばらく解析ができな い状況が続いた。しばらく解釈に困って論文発表できない期間が続いていたが、何年かたった後 に、実は、NiOのMLDの解析には、上述のような単純な式ではなく、結晶の対称性を考慮した 強度計算が必要である¹⁴⁾ことが広島大学の田中新博士によって1990年代にすでに示唆されて いたことが分かった⁴⁶⁾。そこで、田中氏にも共同研究者に加わっていただき、新井邦明氏ととも にコントラストの詳細な解析を始めた。図24-1及び24-2に、はじめてNiOの磁区の完全 なスピン方向の決定が行われた例を示す⁴⁷⁾。図の(a)と(c)に示したのは酸素のK吸収端で観察

された T-domain を反 映したコントラスト である。(e)が、Ni の L 吸収端で測定し た S-domain である。 T-domain に比べると、 多彩なコントラスト を示し、複雑な構造で あることが分かる。し かも、ひとつの Tdomain の枠の中に最 大3種類のコントラ ストがあることが分 かる。これら一つ一つ のコントラストが、異 なるスピン軸をもつ S-domain に対応して いる。これらのイメー ジを、光の入射方向や 偏光を変えながら測 定すると、一つ一つの domain のコントラス トが変化する。その様 子を図24-2(a)と (b) に示す。それぞ れ s と p 偏光に対す る結果である。この結 果と(c)、(d) に示す 結晶の対象性を考慮 したクラスター計算 を比較することによ り、計算と同様の振る 舞いを示す磁区内の スピン軸が完全に決 定された。すなわち、 S1、S2、S3のスピン 軸はそれぞれ [121],[211],[112] に



対応している。図(e)、(f)のこれまで MLD に対して提唱されていたアトミックモデルでけいさん される強度の振る舞いとはまったく異なっていることが分かる。



図24-2 (文献 47 より)

- (a) 図24-1(e)のような像を,光の入射方向を変えながら測定したときのそれぞれの磁区 のコントラストの変化. s 偏光を入射した場合.
- (b) 同様に *p* 偏光を入射した場合.
- (c) (a)に対応するスピン軸に対する結晶対称性を考慮したクラスター計算結果.
- (d) 同様に(b) に対応するクラスター計算結果.
- (e) (c) に対応するアトミックモデルによる計算. 3cos²θ1.
- (f) 同様に(d) に対応するアトミックモデル計算.

その後、研究はさらに進み、反強磁性磁区を隔てる磁壁の観測も行えるようになった。NiOは、 磁気異方性がさほど大きくなく、実際に観測してみると数百nmの磁壁幅があることが分かった。 図24と同様、磁壁内部の磁気コントラストの偏光に対する角度依存性を詳細に測定し、NiOに 存在すると考えられているすべての磁壁の内部のスピン方向の決定に初めて成功することができた⁴⁸⁾。

3.3 界面の情報

MRAM や、ハードディスクなどの磁気記録には交換バイアスを利用することが一般的になって きた。交換バイアスを支配しているのは界面の磁気状態であると考えられており、その様子を直 接的に観測できる PEEM による研究が近年盛んに行われるようになって来た。

Ohldag らは^{49,50)}、反強磁性体の NiO の上に、Co 薄膜を成長させ、MLD で下地の NiO の反 強磁性磁区を観測し、MCD で強磁性 Co 薄膜の磁性を観測した。又、吸収スペクトルで観測され る界面におけるケミカルシフトを利用して、界面が CoNiO の合金状態になっており、強磁性を示 すことを見出した。すなわち、下地 NiO 基板は図24で示したような反強磁性磁区を示しており、 その磁区を転写するような形で Co および界面領域の強磁性磁区が生じている。これらの強磁性 磁区は、転写パターンだけでなく、強磁性体特有のそれ自身の細かい磁区パターンも示している 様子が観測された。これは、元素選択性を上手に利用した研究であり、交換バイアスを示す系の



図25 Fe/NiOの界面に生じる磁気モーメントの関係を模式的に表した図。基板 NiOのスピンの向きに応じて3種類のカップリングの様子が観測された。

重要な情報を与えている。我々は Coの代わりに Fe 薄膜を作成し、その磁気モーメントの解析を 試みた ⁵¹⁾。図25にその様子を示す。

PFのBL-2Cでも、界面の観察を試みた。 同じくNiOの上にCr金属を楔状に蒸着し、 Cr膜厚に依存した下地NiOの磁区パターン の変化を観測を行った⁵²⁾。図26にその観 測結果を示す。図で分かるように、Crが1 層ずつ厚くなるにしたがって、その境界部分 の下地NiO基板の反強磁性磁区にも境界が 現れ、コントラストも変化していることがわ かる。このコントラスト変化は、Crの厚さ が奇数原子層のときに現れている。Cr薄膜 は層間反強磁性を示す系として知られてい る。すなわち、偶数層のときは層間の磁気モ ーメントが反対方向を向いているため、正味 のモーメントが残ることになる。このモ



基板の反強磁性磁区(中段). NiL2吸収端の MLD を利 用して観測したもの. 下段はトポグラフ像. 文献 52 より。

ーメントと、下地の S-domain のスピンが相互作用をした結果、ドメインの変化として観測されたものと考えられている。図26は「固体物理」40巻第1号(2005年)の表紙を飾った。

東北大工学部の角田匡清博士との共同研究として、実際のデバイスで利用されている、 Mn-Ir/Co-Feの2層膜に対する研究行った⁵³。先に述べたように、Mn-IrではMLDは生じない ため、反強磁性磁区そのものの観測は不可能である。しかしながら、実際には強磁性薄膜との界 面で非補償Mnが存在し、それは強磁性的な振る舞いを示すことが知られている。この系は、ま さしく交換バイアスを示す系としてよく利用されている。実際の試料の消磁過程により、ヒステ リシス曲線の様子が異なり、それに応じて交換バイアスの大きさも違う。この研究では、実際に こうしたヒステリシスカーブが、ドメイン構造とどのような対応を示すのかを詳細に調べている。 ドメインの面積が大きいと、交換バイアスの値も大きくなるという、正の相関関係があることが 見いだされた。

界面を研究するためには、硬 X 線の利用も有効であり、10nm を超える膜厚の薄膜に埋もれた界面の情報を得た例も報告されている¹⁹⁾。これは、当時 SPring-8 に在籍していた脇田氏らによって BL39XU においてなされた実験である。

このように、表面に金属がついたままの状態でその下に埋もれている界面の磁気状態を観測で きるということが、放射光 PEEM による磁区観察の大きな特徴である。

4. 時間分解観察



PEEM のひとつの特徴は、数十から数百µmの視野を一気に観測できることであり、実時間観察など、表面におけるダイナミクス観測に威力を発揮している。一方、励起光としてパルス光を用いれば、いわゆるポンプ&プローブ観察によって、非常に高速な現象のダイナミクスが観測可能になる。この場合は、ポンプのほうは光、電場、磁場など様々な外場パルスであればよい。又、 プローブ光のほうはレーザーや放射光などのパルス光が利用されている。

放射光の場合は、半値幅が数十 psのパルスであり、サブナノ秒の時間スケールでのダイナミ クス観測が実現している。放射光パルス同士の間隔は、各施設特有の運転モードで決まっており、 数ナノ秒から数マイクロ秒である。すなわち、励起状態がこの緩和時間内に基底状態に戻れば、 繰り返し撮像が可能となり、ダイナミクスのストロボ観測が可能になる理屈である。

レーザー光でフォトスイッチをオンにし、その瞬間に流れる電流で誘起されるパルス磁場に対 するメゾスコピックサイズの磁石の磁気応答のストロボ撮影は米国の ALS⁵⁴⁾やスイスの SLS⁵⁵⁾ などで行われている。両者の実験は非常に似通っているが、与える磁場パルスの間隔により、メ ゾスコピック磁性体の FC ドメイン(3.

1参照)の磁気渦中心(ボルテックスコ ア)の才差運動の様子が異なって観測さ れている。類似の実験はフランスの ESRF やドイツの BESSY-II などでも 行われるようになっている。プローブパ ルスの間隔は、たとえば、SLS では 960ns、ESRF では 176ns、BESSY II では 800ns の運転モードがよく使われ ている。このような放射光パルスの特性



は、磁区や磁壁運動の速さを観測するのに適した特性である。

我々も2006年度より科学研究費補助金の援助を受けて図27に示すようなポンプ&プロー ブ観察用 PEEM のシステムが構築した 56)。システムは、先に紹介した福本氏をはじめとする BL25SU 関係者のほか、大沢仁志博士らの尽力によって構築された。レーザーシステムは、フェ ムト秒チタンサファイアレーザー(スペクトラフィジックス社製 Tsunami;フェムト秒仕様)、レ ーザーパルスを任意の周波数へ変換するパルスピッカー、再生増幅器(Spitfire Pro)による低周波 数(5 kHz)高出力レーザーパルスを発生させる設備などからなっている。 この図では再生増幅器は 示されていないが、現在では、光誘起磁気ダイナミクスの観測などに利用されている。SPring-8 のバンチモードは、等間隔孤立バンチとバンチトレインの組み合わせである。孤立バンチ部分が 時間分解測定のプローブ光として用いられ、バンチトレインの部分は、時間分解測定を行わない、 多くのユーザーの要望を満たすため、蓄積電流の不足分を補う意味で存在している。(ユーザービ ームタイム中、蓄積電流は100mA である。)他の放射光施設に比べると複雑なバンチ構造を 持つ運転形態になっている。この等間隔孤立バンチとバンチトレインを組み合わせた運転モード はセベラルバンチモードと呼ばれており、バンチ間隔の異なるいくつかの運転モードが用意され ている。図に示したのはそのうちの一つで、342。1nsごとに放射光パルスが実験ステーショ ンに到達するような運転モードである。上述したパルスピッカーを用いることで、この等間隔孤 立バンチにフェムト秒レーザーを同期している。SPring-8の田中義人博士らによって開発された トリガークロック遅延装置がすでに市販ベースになっていたので、それを導入し、レーザー光と 放射光のパルスとのタイミングを任意に取ることができるようになった。また、上述のバンチト レインからのシグナルは、時間分解測定にとっては邪魔な信号である。それらの光電子を検出し ないために、検出器(MCP)にかける高電圧をトレインの周期に合わせ降下させている(図中 VMCP パルス発生器)。検出器に関しては、当初、ディレイライン検出器という、位置情報と時間 情報をパルス信号として取り扱うことのできるものを用いて、ゲート制御を行うことで、トレイ



ン部分のシグナルを除去することを考えていたものの、現状の製品では PEEM の露光による信号 に比べてかなり Dead time が長くなることが懸念されたため、導入を断念した。この、MCPに 印可する電圧を制御することによる露光は、まずまず、うまく行ってはいるものの、デメリット も大きい。なんといってもパルスの立ち上がり、立下りは高周波成分を含んでいるので、電気的 には絶縁されているはずの PEEM の電子レンズ電極にその影響が表れることである。結局、静的 なイメージングを行う場合に比べると、かなりでフォーカスの条件で測定せざるを得ない。また、 できるだけ、オンーオフの電圧幅を小さく保たないと放電なども起こりやすくなる。従って、バ ックグラウンドが無視できるぎりぎりの条件での運用を行っており、結果的にはこれもS/Nを悪 くする原因となっている。我々は、近い将来、この問題を解決するために、高速回転するシャッ ターを導入し、放射光のパルス成分を純度よく取り出す仕組みを導入することを計画している。 硬X線領域ではすでに、実現しているノウハウではあるが、軟X線領域では超高真空対応のもの を開発する必要がある。このシャッターを導入することで、時間分解 PEEM の性能が格段に上が ることを期待している。

さて、図27のシステムではフェムト秒レーザーを3MHz の周波数で、リソグラフィーで作成 した微小磁気回路に接続したフォトダイオードに照射することで、放射光と同期した磁場パルス を発生させ、その磁場パルスに対応するミクロンサイズの微小磁性ドットの磁区運動の様子をス トロボ写真として観測している。その様子を図28に示す。与えた磁場パルス幅は約300psで あり、数百ナノ秒ごとの繰り返し現象としてイメージを取った。図29に磁場パルスの形状を示す。(c) のデータは、オシロコープで観測したものである。この時に流れる電流を見積もることで、磁場 のピーク強度は6mTと見積もることができる。(a)は実際の PEEM イメージであるが、磁場がか かるとその像はひずむ。ある特定の箇所のイメージを切り取り、遅延時間ごとに撮像して並べた ものが(b)であり、実際の磁場パルス形状と一致していることが分かる。さて図28に出は、 0. 8~1. Ons後に、コアが数µm上方に変位している様子が見える。このような磁気渦のコ アの運動の解析から、磁場に対する振動や運動速度などの情報を得ることができる。このような 高速応答現象を観測するためには、パルスに反射が少ないことも重要であり、インピーダンス整 合を取るための終端抵抗の設置や回路形状にも工夫が凝らされている。また図中のサンプルホル ダーの写真に示したように、リソグラフィーで作成したサンプルには抵抗。コンデンサ、フォト ダイオードなどが装着されている。(超高真空のもとでの使用にも耐える銀ペーストで接続してい る。)これらの部品を丁寧に配置しないと、放電や断線などのトラブルが起こることになり、我々 は何度も試行錯誤を繰り返した。PEEM 観察には帯電を避けるよう、極力伝導率の高い基板を用 いるのがふつうであるが、このような実験であまり高いドープ量のシリコン基板を用いると、光 で誘起された電流が基板に漏れ出し、結局磁場がかからない、といった現象も起こる。従って、 表面はインピーダンス整合のこととも合わせ、なるべく大きな面積を金で覆いつつ、基板はノン

ドープのものを用いるとい った工夫をした。サンプルは 東大物性研の大谷義近教授 の研究室で助教として在籍 されていた現九州大学の木 村崇教授に作成していただ いた。のちには兵庫県立大学 の松井真二教授、春山雄一准 教授にもご協力いただいた。

これらのシステムを用い、 ドットの大きさや磁場の強 さによるコアの運動のダイ ナミクス 57)、また複数ドット を配し、その距離を近づけた 時の相互作用の影響など 58)



&プローブ観測を行う際のタイミングの模式図。レーザーによ る磁化反転=>放射光(SR)による観測=>パルス磁場(H) による初期化を繰り返し行う。 のデータを得ることができた。これらの時間分解測定に関しては文献 59 にまとめた。

放射光を利用した PEEM では、未だ磁場パルス以外の外場をポンプとし、磁気ダイナミクスを 観測した例は報告されていない。今後電流や光など様々な外場に対する応答の観測が実現するも のと期待されている。我々は、光による磁化反転のダイナミクスを観測する研究をスタートさせ、 すでに予備的な結果 600を得ている。光による磁化反転は、不可逆的な変化であるため、通常のポ ンプ&プローブ手法では観測できない。したがって、一度磁化反転を起こした領域を最初の状態 に戻してやる必要がある。我々は、サンプルの背後に小型のコイルを配置し、タイミングを同期 させたパルス磁場を発生することで、初期化を行った。すなわち、レーザーによる磁化反転=> 放射光による観測=>パルス磁場による初期化を繰り返し行ったわけである。図30にその模式 図を示す。

また、単発のパルスだけでなく高周波磁場や電場によって磁気渦の運動を観測する実験⁶¹⁾など も進めている。

5. 光電子顕微鏡装置のトラブル対策

当初我々が光電子顕微鏡を放射光施設に持ち込んだ時にはドイツのSTAIB社のPEEMを用いた。 簡易型の装置ではあるが、立ち上げ当初は放電に悩まされた。電子レンズには最高で10~20 kVの高電圧をかけるのがPEEMの特徴である。しかも非常に狭い空間に電極や電流導入端子な どが配置されている。必然的に放電が起こりやすくなる仕掛けになっている。結局装置本体に電 圧を供給する多ピンのコネクタにヒビが入っており、そこが絶縁不良となって、放電が起こり、 また正常な電圧がかかっていなかったことが判明した。正常なコネクタをドイツから空輸しても らい、超高真空立ち上げ後の注意深いエージングによって、ようやく正常動作をさせることがで きた。PFに持ち込んだこの装置は、ビームラインと、普段の置き場所で頻繁な移動が必要であっ たため、ケーブルの抜き差しも頻繁であり、装置の大気開放も頻繁である。極力トラブルを避け るため、ケーブルを外したあとのコネクタも、清潔を保ち、余分な水分やホコリなどが付着しな いよう、カバーをつけるなど細心の注意を払って運用を行った。

SPring-8 では、2台の光電子顕微鏡装置を使用している。いずれの装置に関しても時として放 電が問題になる。狭い空間で高電圧をかける仕組みであるためにやむを得ない側面はあるが、も し放電が継続し、装置本体にダメージが加わったり、電源が故障したりすると、たちどころに放 射光利用のユーザータイムに支障をきたす。この点が通常の研究機関や大学所属の実験室との大 きな違いである。我々の装置のうちの一台は簡易型の PEEM 装置であり、ELMITEC 社性の PEEMSPECTEOR と呼ばれる装置である。比較的安価で取り扱いが容易であるために、日本で も多くの納入実績のある装置である。しかしながらコンパクトであるがために多くの研究室で、 放電のトラブルを抱えていると聞いている。一つには、納入会社の ELMITEC 社があるドイツと 日本の湿度環境に違いがあろう。しかも、トラブルの度ごとに装置をドイツに空輸せねばならず、 多くの時間を浪費することになる。筆者らは、何度かのトラブルを経験した後に、コントロール 電源を自作することにした。すなわち日本製の高圧電源を組み合わせてレンズ電源とし、それを LAN でコントロール可能な D-A コンバータによってコントロールする形式である。また、オリ ジナルの電源で、表示と実際の電圧にズレがあり、そのために MCP や蛍光スクリーンを放電で 駄目にした経験もあったので、出力電源が正常であるかどうかも A-D コンバータでモニターでき るような装置を開発した。電源そのものの電流容量も、必要最小限になるような仕様とし、放電 が継続せず、直ぐにストップするような設計とした。また、デジタル信号系やアースレベルと、 高圧部との間にシールド板を配し、万が一の放電の際にも、影響がデジタル信号系、ひいては制 御用コンピュータに及ばないように設計した。電源の電圧設定が、PEEM のフォーカス条件を決 めるが、いくつかの最適値をコンピュータ、電源本体に覚え込ませ、素早く像のイメージングが 行えるよう工夫を凝らした。コンピュータの制御プログラムも LABVIEW を用いた自作である。 このような電源を新たに製作した結果、放電によるトラブルは格段に減少し、今は安定してユー ザー利用を行うことができている。万が一のトラブルの際にも、設計概念を理解しているため、 素早い対応が、しかも国内で可能となっている。

トラブルの少ないもうひとつの要因は、本装置がビームラインに設置されており、本体部分を 大気圧に開放する機会があまりないことであろうと思われる。装置を一度大気開放すると、ベー ク排気の後、超高真空へ向けての立ち上げ作業、電圧をゆっくり上げながらのエージング作業が 必要になる。本装置ではそのような機会が少ないために、放電の回数も必然的に少なく、それに 伴う汚れなども格段に少なくなっているものと思われる。

オリジナルの電源を用い、しかも大気開放を頻繁に行う装置では一度放電が起こるとそれが継続し、また問題解決のために装置を開けてクリーニングを施し、そのことが、真空が十分枯れき っていないうちの新たなエージング作業を必要としてまた放電が継続するという悪循環が起こっ ていたのではないかと推察される。

電源、装置とも安定的に利用できるようになり、その後の時間分解測定手法の開発など MCP 電源に手を入れてもトラブルが起きにくくなるなど、自作電源の導入は大きな進歩をもたらした。

6. まとめ

以上、放射光と光電子顕微鏡による磁区観察について、筆者の経験をもとにそのノウハウを解 説してきた。途中共同研究者として名前をあげさせていただいた方の協力なしにはこれらの研究 成果はあがらなかった。ここに感謝を申し上げたい。また、これらの研究についてはレビュー論 文⁶²⁾も執筆したので、そちらも参照していただければ幸いである。このような研究は、放射光の 特徴を生かした研究であることはすでに述べた。しかし、より早い磁気ダイナミクス、より空間 分解能が必要とされる実験など、まだまだ研究の目指すべき道は続いている。今後の発展を期待 したい。

参考文献

1. たとえば、「X線光電子分光法」日本表面科学会編、丸善.

2. 「SPring-8 ナノテクノロジー総合支援のための PEEM 導入と立ち上げ」,小林啓介,郭方准, 脇田高徳,木下豊彦, SPring-8 利用者情報 Vol. 10, No. 2(2005)112

3. 郭方准,小林啓介,木下豊彦 「表面科学誌」 Vol. 26 No. 8 (2005) 460.

4. F. -Z. Guo et al., Rev. Sci. Instrum., 78 (2007) 066107.

5. LEEM&PEEM の英文のレビューとしては,たとえば,A. Locatelli and E. Bauer, J. Phys. Condens. Matter 20 (2008) 093002 などを参照のこと.

6 日本語の参考書としては、表面物理工学ハンドブック 第2版 丸善、小間篤、青野正和、石橋幸治、塚田捷、常行真司、長谷川修司、八木克道、吉信淳 編、5.4章に LEEM、5.8章 に PEEM の紹介がされている.

7. R_{\circ} Yamaguchi, et al., IBM Journal of Research and Development 55 (2011) 12.

8. たとえば、「放射光 X 線磁気分光と散乱」 橋爪, 岩住編, アイピーシー.

9.「X線吸収分光法---XAFS とその応用」太田俊明編,第6章,アイピーシー.

10.「軟X線磁気円二色性に依る磁気材料評価」中村哲也, まぐね Vol.1, No.3, 2006, p.6.

11.「ダイヤモンドX線移相子を用いた円偏光変調法によるXMCD測定」鈴木基寛, SPring-8利用者情報/1998年11月 p. 40などを参照のこと.

12. W. Kuch, et al., Phys. Rev. B62(2000) 3824.

13. G. van der Laan, et al., Phys Rev. B34(1986)6529.

14. I.P.Krug et al., Phys. Rev. B78 (2008) 064427.

15. T. Kinoshita et al., J. Magn. Magn. Materials, 148 (1995) 64.

16. F. U. Hillebrecht et al., Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 2224.

17. D. Spanke et al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 78 (1996)299.

18. T. Kinoshita, E. Ikenaga, J.-J. Kim, S. Ueda, M. Kobata, J. R. Harries, K. Shimada, A. Ino, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, K. Kobayashi, W. Drube and C. Kunz, Surface Science 601 (2007) 4754.

- 19. T. Wakita et al., Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2006) 1886 : T. Taniuchi et al., AIP Conference Proceedings 879(2007)1353.
- 20.「放射光ビームライン光学技術入門-はじめて放射光を使う利用者のために」、日本放射光学
- 会,大橋治彦,平野馨一編,2008年12月,第10章.
- 21. J. Sthör et al., Science 259 (1993) 658.
- 22. J. Bahrdt et al_o , Rev. Sci. Instrum 63, (1992) 339
- 23. T. Koide et al, Phys. Rev. B44, (1991) 4697.
- 24. http://user.spring8.or.jp/sp8info/?p=3144
- 25. Ch. Roth et al., Phys. Rev. Lett. 70, (1993)3479.
- 26. T. Kinoshita et al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenomn. 92 (1998) 165.
- 27. K. Amemiya et al., J. Synchrotron Rad. 3, (1996) 3.
- 28. F. U. Hillebrecht et al., Phys. Rev. Lett., 86(2001)3419.
- 29. N. Matsubayashi et al., Rev. Sci. Instrum. 63, (1992) 1363.
- 30. M. Watanabe et al., SPIE Vol.3150, (1997) 58.
- 31. H. Ohashi et al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A467 (2001)529.
- 32. H. Ohashi et al., AIP Conference Proc. 879 (2007) 523.
- 33. T. Muro et al., AIP Conference Proc. 879, (2007)571.
- 32. S. Imada et al., Jpn. J. Appl. Phys. 39, (2000)L585.
- 33. 木原隆幸,小野寛太,奥田太一,原沢あゆみ,尾嶋正治,横尾篤,木下豊彦 日本応用磁 気学会誌 25 (2001) 1059-1062.
- 34. H. Kiwata, T. Kihara, K. Ono, M. Oshima, A. Yokoo, A. Harasawa, T. Okuda and T. Kinoshita, Surface Review and Letters, 9 (2002) 365.
- 35. 小野寛太,木下豊彦,尾嶋正治 表面科学 23巻5号 (2002) 300-305.
- 36. T. Okuda, H. Kiwata, T. Matsushima, T. Wakita, A. Harasawa, K. Ono, T. Kihara, M.
- Oshima, A. Yokoo and T. Kinoshita, Japanese Journal of Applied Physics, 43 (2004) 4179
- 37. 奥田太一,木下豊彦,表面科学 26 巻 第1号 (2005) p. 19.
- 38. <u>http://math.nist.gov/oommf/software.html</u> (As of April27, 2009).
- 39. N. Ohshima et al., J.Appl. Phys. 107, (2010) 103912.
- 40. S. Yamamoto et al., Materials Transactions, 49(2008) 2354.
- 41. A. Scholl, et al., Science, 287(2000)1014.
- 42. H. Ohldag et al., Phys. Rev. Lett. 86(2001)2878.
- 43. G.A.Slack, J. Appl. Phys. 31 (1960)1571.
- 44. M. Ando, Phys. Status Solidi A24 (1966) 664.
- 45. T. Kinoshita et al., J. Phys. Soc. Jpn., 73 (2004)2932.
- 46. A. Tanaka and T. Jo: J. Phys. Soc. Jpn. 63 (1994) 2788.
- 47. K. Arai et al., J. Phys. Soc. Jpn. 79 (2010) 013703 and Erattum, J. Phys. Soc. Jpn. 79(2010)038001.
- 48. K. Arai et al., Phys. Rev. B85 (2012) 104418.
- 49. H. Ohldag et al., Phys. Rev. Lett. 87,(2001)247201.
- 50. H. Ohldag et al., Phys. Rev. B 79, (2009) 052403.
- 51. K. Arai et al., J. Appl. Phys. 110, (2011) 084306.
- 52. H. –L. Sun et al., J. Electron Spectrosc. Relt. Phenomn., 144-147 (2005) 753.
- 53. H. Takahashi et al., J. Appl. Phys., 105, (2009) 07D720.
- 54. S.-B. Choe, el. al. Science 304, (2004)420.
- 55. J. Raabe et al., Phys. Rev. Lett. 94(2005) 217204.
- 56. K. Fukumoto et al., Rev. Sci. Instrum.79 (2008) 063903.
- 57. K. Fukumoto et al., Phys. Rev. B85, (2012) 134414.
- 58. K. Arai et al., Jpn. J. Appl. Phys. 50, (2011) 053001.
- 59. T. Kinoshita et al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenomn. 185, (2012) 385.
- 60. T. Ohkochi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 51, (2012) 073001.
- 61. T. Ohkochi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 51, (2012) 128001.
- 62. T. Kinoshita et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, (2013) 021005.

紫外レーザー励起による磁気円二色性光電子顕微鏡 九州大学大学院総合理工学研究院 中川 剛志

内容

- 1. 紫外線による磁気円二色性光電子顕微鏡
- 2. 価電子励起光電子磁気円二色性の試みとその問題点
- 3. 光電子磁気円二色性の非対称度を高める工夫
- 4. UV-MCD-PEEM 測定する際に注意すべきこと
- 5. 高速磁気顕微イメージングの応用例

6. 今後の展開

1. 紫外線による磁気円二色性光電子顕微鏡

光電子顕微鏡(PEEM)はナノメートルの空間分解能を持つ顕微鏡である。励起光に円偏 光を用いれば磁気円二色性(Magnetic Circular Dichroism; MCD)により磁気観察ができる。 X線を用いた MCD-PEEM(XMCD-PEEM)による顕微磁気観測は第三世代放射光施設の増 加とともに広く用いられるようになった[Kinoshita, Stohr,]。ここでは XMCD-PEEM に比べ馴 染みは少ないが、実験室で行える紫外線励起による光電子磁気円二色性(UV-MCD)とその 顕微鏡への発展を紹介する。実験室で行える薄膜の顕微磁気観測は様々なものがあり、可 視光による Kerr 顕微鏡が比較的導入し易いことからよく用いられる[Alex]。UV-MCD-PEEM は Kerr 顕微鏡に類似する点が多いが、その空間分解能や検出感度が大幅に向上している。 図1に UV-MCD-PEEM による顕微磁区観察の一例を示す。この顕微像は右円偏光と左円偏 光で測定した像の差分である。図1の測定では露出時間は4秒と1/30秒であり、リアルタ イムで迅速に磁区測定できることがわかる。

レーザーの利点はその高い強度とパルス特性である。例えば 1W, 3.1 eV (405 nm)のレーザ ーでは 2×10¹⁸ 個/s もの光子を含み、放射光に比べ 3 桁以上高い強度である。高強度レーザ ーを使うことで短時間に磁区像を測定でき、ビデオレート (30 フレーム/s) やさらに超高速 の測定(1000 フレーム/s)も可能である[Kronseder]。パルスレーザーを使う場合、パルス幅は 100 fs 程度は十分に可能であり、PEEM による高い空間分解能(<100 nm)と超高速時間分 解測定の両立ができる[Nakagawa2009]。

2. 価電子励起光電子磁気円二色性の試みとその問題点

厚さが原子数層からナノメートル程度の磁性薄膜の研究には光や電子による測定法が用いられる。その主な理由は薄膜への感度を上げ、厚い基板からの不要な情報の混入を避けるためである。光学測定は MCD を利用した手法が多い[Sato]。 MCD の起源は、スピン軌道相互作用により分裂した電子状態が左右円偏光へ異なる応答をすることである。MCD 法

は試料に光を当て、その結果生じる反射光や透過光を測定する方法と放出光電子を測定す る方法に大別できる。価電子帯 MCD を利用した可視や紫外光による反射測定(磁気光学 Kerr 効果、Magneto-Optical Kerr Effect、MOKE)は光のみを検出する方法であるため微弱な信号を 精度よく計測でき、原子一層程度の薄膜も測定可能である[Sato]。MOKE 法は、磁気光学顕 微鏡として応用され、さらにサブピコ秒の超短パルスレーザーにより磁化の超高速現象を 明らかにする手法としても確立されている。

磁気観察にはスピン偏極自体を測定する手法もあり、代表例としてモット検出器がある。 しかし、MCD はスピン偏極測定に比べると実験機器が単純である上に高効率、つまり磁化 に関する感度が高い。そのため、顕微分光法との相性がよい。MCD 効果はスピン軌道相互 作用による軌道分裂とスピン偏極の両方に依存する。Ni の場合、3d 価電子帯でのスピン軌 道相互作用による軌道分裂はわずか数十 meV 程度である。一方 XMCD で測定される $2p \rightarrow 3d$ 光学遷移において、 $2p_{1/2}$ 、 $2p_{3/2}$ 内殻での軌道分裂幅は~20 eV とはるかに大きい。したがって、 価電子帯励起の測定では 2p 内殻励起に比べ MCD 効果が格段に弱い。XMCD により得られ る MCD 非対称度は原子 10 層程度の薄膜であっても 10%程度と大きい。ここで MCD 非対 称度は下記のようにと定義する。

MCD 非対称度 = $\frac{I(+M) - I(-M)}{I(+M) + I(-M)} = \frac{I(+\sigma) - I(-\sigma)}{I(+\sigma) + I(-\sigma)}$

I(+M), *I*(-M)は円偏光を固定した場合のそれぞれ正負磁場の時の光電子放出量である。±σは 円偏光の向きであり、磁場を反転させる代わりに左右円偏光反転させても同じ非対称度が 得られる。XMCD では大きな非対称度が得られるので、光電子顕微鏡をそのまま用いて、 サブミクロンの顕微計測が可能であり、この手法は薄膜表面磁性研究にとって強力な手法 となっている[Kinoshita]。しかし、XMCD 測定には高輝度な第三世代放射光源が不可欠であ り、実験室で XMCD-PEEM 測定を行うことはできない。

一方、価電子帯の光電子 MCD はほとんど注目を集めなかった。その理由の一つは、価電 子帯での弱いスピン軌道相互作用である[Sato]。光電子 MCD 非対称度は光の吸収差に比例 するので、MOKE で測定される楕円率(ellipticity)と同値となる[Sato]。一般に価電子励起の MOKE 楕円率から推定される光電子 MCD 非対称度は高々~0.1%に過ぎない。Kuch らの研 究により、価電子帯でも角度とエネルギーを分解した特別な光電子測定(角度分解光電子 分光)では10%以上の十分大きい MCD 非対称度が得られることがわかっていた[Kuch]。例 として、図2に角度分解光電子分光法による Ni 薄膜の光電子 MCD の測定例をあげる。フ ェルミ準位近傍の電子が 10%程度の MCD を示すことがわかる。しかし、角度分解光電子 分光をそのまま顕微分光へ発展させるには装置が大きくなり、かつ検出効率も悪いために 困難である。角度とエネルギーを積分した MCD 測定は Elmers らにより試みられたが、残 念ながら非対称度は著しく小さく、膜厚 100 nm(~500 原子層相当)の Fe でもその非対称度は 高々0.2%程度であった[Marx]。これは MOKE の楕円率から推測される MCD 非対称度と矛 盾しない値であり、磁気コントラストを得るためには十分な値とは言えない。これら UV-MCD-PEEM の結果はいずれも悲観的なものであり、一方 XMCD-PEEM は放射光施設の 普及とともに順調に発展していった。そのため実験室での光電子顕微鏡を用いた磁気顕微 測定は XMCD-PEEM に比べ進展が大幅に遅れた。

3. 光電子磁気円二色性の非対称度を高める工夫

光電子 MCD 非対称度を高くするには角度分解光電子分光に倣って、エネルギーと運動量 が規定された光電子を捕捉すればよい。そのためには後述のように光電効果閾値付近の低 エネルギー光電子を測定することが重要である。閾値光電子を測定するには、主に 2 つの 方法がある。一つは励起光エネルギーを固定し、表面修飾(主にアルカリ原子吸着による) することで試料の仕事関数を変化させる方法。もう一つは試料の仕事関数は固定したまま 励起光のエネルギーを変化させる方法である。実験対象の仕事関数を変化させると磁化や 磁区構造が変化することがあるので、励起光エネルギーを変化させる方法が望ましい。し かし、そのためには高価な波長可変レーザーが必要であるので、初期の実験では仕事関数 を変化させて、固定波長レーザーを用いて、MCDの研究を進めた。このとき汎用の赤色レ ーザーの光子エネルギー(635nm, 1.95 eV)と表面修飾のために使用したセシウムの仕事関 数(最低で~1.5 eV)が近いことが幸いした。そのため、研究初期の段階で 10%に近い、高い MCD 非対称度を得ることができた[Nakagawa2006]。

ここでは光電子 MCD の測定方法例を述べる。MCD 非対称度がどの程度得られるかは試 料の種類、光子エネルギー、仕事関数などの実験条件に強く依存する。したがって、光電 子顕微鏡で顕微磁区測定する際には、予めどの程度の MCD 非対称度が得られるかを精度よ く測定しておくほうがよい。試料によっては MCD 非対称度が低く、MCD 測定が容易でな いものもある。その場合 MCD-PEEM 測定からだけでは磁区観察が出来ない理由を見つける のは難しい。MCD 非対称度を測定するには図 3 のような空間分解能が必要ない簡単な実験 配置が適している[nakagawa2007]。 試料を電磁石の中心に置き、回転させることで、面直 と面内方向に磁場を掛けることができ、それぞれの磁化方向で光電子 MCD が測定できる。 MCD 測定では試料表面から放出された光電子を試料に流れ込む電流量(電子収量)として 計測する。

励起光源としては先述のようにエネルギー可変レーザーが使い易い。表面修飾により試料 の仕事関数を制御できる場合やハイパスフィルターを導入出来る場合はエネルギー固定レ ーザーでもよい。エネルギー固定レーザーとしては高強度な半導体レーザー(2 eV から 3.5 eV で各種あり)が利用できる。半導体レーザーでは紫外線領域でも 1W 級の高出力型が入手 可能である。一連の 3d 磁性金属 Fe、Co、Ni の仕事関数は 4.5-5.5 eV 程度であるので、使 用するレーザーによっては光電子放出させるためにはアルカリ金属などの低仕事関数物質 で表面修飾する必要がある。これらのレーザーを利用する場合、レーザー光の偏光は偏光 子および波長板(もしくはポッケルスセル、光弾性変調子)により簡単に制御できる。ポッケ ルスセルや光弾性変調子は紫外~可視の領域で使用できる偏光素子であり、これを用いた 変調法は信号とノイズの比を格段に向上させる[Nakagawa2007]。特定の角度(図 3(a)の配置 では45度入射)では反射光も測定できるので、MOKEと光電子 MCD が同時測定できるので、 試料が磁化されているか確認でき便利である。

MCD 非対称度を求めた測定例を図4に示す。測定は全電子収量法で、すべての運動エネ ルギーおよび放出角度の光電子を測定することに相当する。励起光はTi:Sの波長可変レー ザーで、その4倍波(*hv* = 5.9~5.0 eV)を用いている。図4(a)は*hv* = 5.3 eV で測定した磁化曲 線を示す。試料は表面垂直方向に磁化されやすいCu(001)基板上の12原子層(ML)のNi薄膜 である。この試料の仕事関数は約5.15 eV である。光電子MCD 非対称度は10%であり、MOKE 測定による楕円率から見積もられるMCD 非対称度~0.1%と比べて、2桁程度感度が向上し ている。

大きな MCD 非対称度が生じ、磁化曲線が明確に測定できている図 4(a)の結果は励起エネ ルギーと仕事関数の差が 1 eV 以下の場合に限られる。励起光エネルギーと仕事関数の差が 大きくなるにつれ、MCD 非対称度は低下する。図 4(b)は、Cu(001)上の 12 ML の Ni 薄膜か らの光電子 MCD 非対称度を光エネルギーの関数としてプロットしたものである。MCD 非 対称度は光子エネルギーと仕事関数がほぼ一致する場合、すなわち光電子放出閾値付近で 10%以上という大きな値を示している。角度、エネルギーとも積分した測定であるにもか かわらず、10%を越える MCD 非対称度を得ることができている。しかし、光子エネルギー が大きくなるにつれ、MCD 非対称度は減少し、急激にゼロに近づく。このような光電子閾 値で大きな MCD 非対称度が得られることは Ni 薄膜だけでなく、Fe や Co でも同様に観測 されている[Nakagawa2006, Hild, Melchior]。

同様の測定は光子エネルギーを固定し、表面修飾により仕事関数を制御すれば汎用レーザ ーでもできる[Nakagawa2006]。しかし、仕事関数をコントロールすることは手間が掛かり、 表面の状態を変えてしまうので、できれば波長可変のレーザーを励起光源とするか PEEM にエネルギーフィルターを導入することが望ましい。

閾値付近で MCD 非対称度が大きくなる主な理由は図 5 に示すように次の二点である。第 ーに、光電子閾値付近(閾値光電子法)では運動エネルギー(E_K)がゼロ付近の電子のみを測 定している(図 5(a))。すなわち、多数スピン、少数スピン状態密度の差が大きい Fermi 準 位近傍の電子のみを選別して観測することに対応している。第二に、放出された光電子の 表面平行方向の運動量 k_{ll} は $k_{ll}=\sqrt{2mE_k/h^2}$ で与えられ[Hufner]、 E_K が 0 付近では光電子の

表面平行方向の運動量も0に近い(図 5(b))。そのため全光学遷移のうち、閾値光電子として 測定されるのはFermi準位付近かつ運動量空間で限られた電子のみとなっている。これら二 つの理由から、閾値光電子法は角度分解光電子分光法に類似の測定となる。そのため、片 方のスピン状態からの寄与が大きくなり、大きな MCD 非対称度が得られる。測定する光電 子のエネルギーを高くすることは反対のスピン状態の寄与が増えることに相当し、その結 果 MCD 非対称度は打ち消され、急激にゼロに近づく。一方、反射光を測定する MOKE で は円二色性非対称度が小さい。これは MOKE では光学遷移の総和を測定しているため、多 数スピンと少数スピンが打ち消しあった状態を測定していることが理由である。一般的に、 スピン軌道相互作用が大きく、Fermi 準位でのスピン状態密度の差が大きい物質ほど、閾値 での MCD 非対称度は大きくなる。

ハイパス型のエネルギーフィルターが利用出来る場合、閾値光電子の制約は若干緩くなる。図 5(a)にあるようにハイパスフィルターを使うと、測定する光電子の運動エネルギー幅 は光子エネルギーとハイパスフィルターの電圧によって規定される。すなわち、仕事関数 よりも十分に大きな光子エネルギーで電子励起し、MCDを低下させる不要な光電子をハイ パスフィルターで取り除ける。あまり光電子の運動エネルギーが大きくなると、先の第二 条件で示した運動量を規定する効果が薄れ(図 5(b))、MCD 非対称度が下がる。運動量を規 定するには光子エネルギーと仕事関数の差は 1 eV 程度に抑える必要がある。

閾値光電子では励起される光電子の運動量が限定されるが、この効果は単結晶であるこ とが前提となる。もし薄膜が多結晶である場合、異なる面指数から放出される光電子の表 面平行方向の運動量はともにほぼゼロとなるが、表面垂直方向の運動量は面指数に依存す る。そのため、運動量空間での異なる電子状態が混在し、MCDの打ち消し合いが起こりう る。例えば図 5(c)のような fcc Ni からの光電子放出過程を考える。光電子閾値付近では表面 平行方向の運動量はほぼゼロであり、表面垂直方向の運動量のみを持つ。したがって(100) 面では電子の始状態は *ГX* 方向であり、(111)面では *ГL* 方向である。これら異なる運動量 方向の電子バンドの MCD 非対称度が同じ符号である保証はなく、打ち消し合いが起こりう る。このことから、MCD 光電子法を有効に使うには試料は単結晶であることが望ましい。

MCD 非対称度の大きさは励起光エネルギーだけでなく、試料の磁化方向や光の入射角に も大きく依存する(図 6)。一般に可視・紫外領域の MCD は面内磁化膜に比べ面直磁化膜で 大きな非対称度を示し、面直磁化膜の方が磁区観察は容易である。図 6(a)に Ni(5-15 ML)/Cu(001)の非対称度を示す。仕事関数と光子エネルギーを揃えるために、試料は原子 0.2 層程度の Cs で被覆されている(Cs は仕事関数がもっとも低い物質であり、吸着により表面 の仕事関数を最高で 1.5 eV まで低下させられる)。Cu(001)上の Ni は膜厚により磁化容易軸 が変化する。8 ML 以下で磁化方向は面内に、8 ML 以上で面直となる。図 6 (a)より面内磁 化膜では面直磁化膜に比べ光電子 MCD 非対称度がおおよそ 1/10 になっていることがわか る。面内磁化の感度が小さいことは MOKE 楕円率でも観測されるものである [Zak]。また MCD 非対称度は図 6(b)、6(c)に示すような複雑な角度依存性が見られる。面直磁化膜では、 非対称度は 0 度入射付近で大きく、入射角が大きくなるにつれ単調に減少するが、面内磁 化膜では、非対称度は 0 度入射のときゼロで、60 度付近で極大を示す。破線は誘電率から 求めた MOKE 楕円率の角度依存性[Zak]であるが、定性的に光電子 MCD 非対称度の入射角 依存性と似ている。一方、XMCD では面内、面直といった磁化方向に関係なく、同じ強度 の MCD 非対称度が得られる。XMCD の MCD 非対称度は円偏光度(P_c)の向きと大きさを表 すヘリシティーと呼ばれるベクトル h (h = P_ck、k は光の進行方向単位ベクトル)と磁化(M) の内積(Mh)に比例する。これらの違いは可視光や紫外光は薄膜の界面や表面で反射し、 X線は極端な斜入射条件でない限り反射しないことにある。図 6(d)に示すように可視光や紫 外光では円偏光は 0~50°程度の入射角で反射するときにはヘリシティーがほぼ反転する。 MCD 強度は Mh に比例するので、面直磁化膜では入射光と反射光で同じ符号になり、反射 光が MCD を増大させる。これに対して、面内磁化膜ではヘリシティー反転により入射光と 反射光で MCD の符号が反転し打ち消し合う。面内磁化膜では面直磁化膜に比べ MCD が約 1 桁弱くなるのはこのためである。

4. UV-MCD-PEEM 測定する際の問題点

4.1 空間電荷効果

パルスレーザーを励起光源として使う際には空間電荷効果が問題になる。空間電荷効果と は放出された電子間の反発であり、この反発のため、得られる MCD-PEEM 像が不鮮明にな る(図7(a) [Nakagawa2009]。使用したレーザーはパルス幅 100 fs、約10 ns の繰り返しで 発光している。入射光強度が高くなると、磁区像が不鮮明になる様子がわかる。図7(b)に磁 壁を横切る位置での MCD 非対称度を示す。この試料の場合、磁壁幅そのものは 50nm 以下 であり、見かけ上の磁壁の広がりは電子反発による空間分解能の低下による。図7(c)に示す ように、レーザーの入射強度が 0.2 mW と非常に弱い場合の空間分解能は 50 nm 程度である が、10 mW のレーザーでは空間分解能は 10 µm 程度とかなり低下する。これよりパルスレ ーザーを光源とするときは強度に十分注意する必要があることがわかる。一方、連続光レ ーザーでは 50 nm 程度の空間分解能では空間電荷効果の影響はほとんど現れない。

4.2 円偏光度の歪み

MCD-PEEM 測定する際には適切な光学素子を選定することが重要である。紫外・可視の MCD では円偏光は 1/4 波長板などの光学素子により得ている。これらの素子は偏光方向に より位相の進みが異なる、いわゆる光学遅延の性質を利用している。この光学遅延は一般 に波長が短くなるほど大きくなる傾向がある。PEEM は真空槽内で測定されるので、光は真 空窓を通過する。その際、真空窓に使われる材料からの意図しない光学遅延が問題となる。 図 8 は窓材として一軸異方性がある石英(紫外線用真空窓としてよく使用される)と等方 的な CaF₂を使用した場合の MCD-PEEM 像である。石英窓を使用した場合(図 8(a))、円偏 光は歪み、楕円偏光になる。図中に示したように窓を通過した左右円偏光はお互いに短軸 長軸が異なる楕円となる。その結果、MCD 非対称度は正負対称とならず、大きなバックグ ラウンドが重畳され、MCD-PEEM 像は不鮮明になる。一方、歪みがない CaF₂窓を用いた場 合(図 8(b))、MCD 非対称度にバックグラウンドはなく、磁区は鮮明に観察できる。石英窓 使用時のような円偏光の歪みは屈折率が大きい紫外線(波長 400 nm 以下)でとくに顕著であ る。そのため MCD-PEEM ではなるべく CaF₂などの等方的な光学材料を使用する必要がある[Fujiwara]。

5. 高速磁気顕微イメージングの応用例

磁壁の伝達は 10⁶ m/s 以上と高速であり、それを実時間で顕微測定することは非常に困難 であった。しかし、Kronseder らは MCD-PEEM と超高速カメラ(毎秒 1000 フレーム)を組 み合わせることで、Fe/Ni/Cu(001)における磁壁移動の様子を実時間で観測している [Kronseder]。Fe/Ni/Cu(001)は光電子閾値付近で 20%程度の大きな MCD 非対称度を示す(図 9(a))。このように大きな MCD 非対称度を示す試料の場合、磁区観測するためには左右円偏 光両者での測定が必ずしも必要ではない。右もしくは左円偏光による測定のみで磁区が明 瞭に観察できる。円偏光固定で磁区測定ができることから、偏光切り替えの必要がなく、 高速測定に適している。高強度レーザー、高速カメラ、高い磁気円二色性を示す試料の条 件が揃えば、1 ms の非繰り返し時間分解能と 50 nm 程度の空間分解能で磁区観察が行える。 この測定法は超高速測定に用いられるポンププローブ測定とは異なり、磁区反転などの非 繰り返し動的過程を観察するのに適している。

Fe/Ni/Cu(001)は小さな磁気異方性をもつため、磁区構造は図 9(a)のように縞状になること がある。縞状磁区の幅は狭く、隣接する磁壁間が 1 μm 程度である。このように磁壁の間隔 が狭い場合、一箇所の磁壁が動くと、隣接する磁壁が連動して移動する現象が見られる。 図 9(b)から時間が進むにつれ i)→ii)→iii)ように磁壁が移動している様子がわかる。2 つの隣 接する磁壁に注目すると、緑色の磁区の磁壁が動いてから約 490 ms 後に隣接する青色の磁 区が移動する様子を見事に捉えられている。

6. 今後の進展

近年、磁性薄膜やスピン軌道相互作用の大きい重金属からの反射を用いた高効率なスピン分解測定器が発展している。これらは従来のモット検出器にくらべ 100 倍程度の検出効率があり、スピン分解光電子分光へ導入が進んでいる。Tusche らは W(100)表面からの反射を利用し、レーザーPEEM により Co/Cu(001)の磁区観察に成功している[Tusche]。閾値 MCD-PEEM に比べると測定時間(数分程度)はかかるが、原理的には試料が単結晶であるなどの制約が無いので、今後の発展が期待される。

本稿では磁気円二色性の結果のみ紹介したが、磁気線二色性も可能である[nakagawa2007]。 また光源としてレーザーを用いているので、原理的には超高速時間分解測定もしくは多光 子励起による磁区観測が可能である[nakagawa2009_2, Hild, Melchior]。将来的にはナノメー トルの空間分解能かつ 1ps 以下での時間分解磁区測定の進展が望まれる。そのためには比較 的低いポンプエネルギーで磁化変化を起こす実験試料と速い繰り返しを持つ超短パルスレ ーザーが求められる。 参考文献

[Alex] Alex Hubert, Rudolf Schäfer, Magnetic Domains, Springer (Berlin), 2008

- [Fujiwara] 藤原裕之、分光エリプソメトリー(第2版)、丸善出版 (2011). 窓材として融解 石英を応力が掛からないように設置すれば偏光の歪みはほとんど起こらないが、 取り扱いには注意が必要である。
- [Hild] K. Hild, G. Schoenhense, H. J. Elmers, T. Nakagawa, T. Yokoyama, K. Tarafder and P. M. Oppeneer, Phys. Rev. B 85, 014426 (2011)
- [Hufner] S. Hüfner Photoelectron Spectroscopy, 2nd edition, Springer(Berlin), 1996
- [Kinoshita] 木下豊彦先生、同一著書内の解説
- [Kronseder] M. Kronseder, M. Buchner, H.G. Bauer and C.H. Back, Nat. Commun. 4:2054 doi: 10.1038/ncomms3054 (2013)
- [Kuch] W. Kuch and C.M. Schneider, Rep. Prog. Phys. 64 (2001) 147
- [Marx2000] G.K.L. Marx, H.J. Elmers, and G. Schönhense, Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 5888
- [Melchior] P. Melchior, M. Rollinger, P. Thielen, S. Alebrand, U. Bierbrauer, C. Schneider, M. Gottwald, M. Hehn, S. Mangin, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann, Phys. Rev. B 88, 104415 (2013)
- [Nakagawa2007] T. Nakagawa, T. Yokoyama, M. Hosaka, and M. Katoh, Rev. Sci. Instrum., **78**, 023907 (2007)
- [Nakagawa2006] T. Nakagawa and T. Yokoyama, Phys. Rev. Lett. 96 (2006) 237402
- [Nakagawa2009] Takeshi Nakagawa, Kazuya Watanabe, Yoshiyasu Matsumoto and Toshihiko Yokoyama, J. Phys.: Condens. Matter **21** (2009) 314010
- [Nakagawa2009_2] T. Nakagawa, I. Yamamoto, Y. Takagi, K. Watanabe, Y. Matsumoto, and T. Yokoyama, Phys. Rev. B 79, 172404 (2009)

[Sato] 佐藤 勝昭、光と磁気、朝倉書店 (2001)

[Stohr] J. Stöhr, Y. Wu, B. D. Hermsmeier, M. G. Samant, G. R. Harp, S. Koranda, D. Dunham and B. P. Tonner, Science, 259, 658 (1993).

[Tusche]C. Tusche, M. Ellguth, A. Ünal, C. Chiang, A. Winkelmann, A. Krasyuk, M. Hahn, G.

Schöhense, and J. Kirschner, J. App. Phys. Lett. 99, pp. 032505 (2011)

[Zak] J. Zak, E.R. Moog, C. Liu, and S.D. Bader, Phys. Rev. B43 (1991) 6423

図1

MCD-PEEM で測定した磁区像。試料は Cs で被覆された Ni(12ML)/Cu(001)であり、面直磁 化している。励起光エネルギーは 3.1 eV で、パワーは約 5 mW。露出時間は(a)4 s および(b) 1/30s。 図2

(a) Ni(12 ML)/Cu(001)における磁気円二色性角度分解光電子の結果。励起光エネルギーは 5.9 eV である。試料の磁化を反転させて磁気円二色性を測定している。

(b) MCD 非対称度のエネルギー依存性。実線は(a)から得た MCD 非対称度。点線は MCD 非 対称度をフェルミ準位から積分したもので、全電子収量法での MCD 非対称度に相当する。 文献[Nakagawa2012] より許可を得て転載。

図3

(a) MCD 非対称度と磁化曲線を測定するための実験配置。磁気光学 Kerr 効果(MOKE)で は反射光を測定し、光電子 MCD では試料に流れ込む全電子収量を測定する。試料は紙面垂 直軸周りに回転可能で、磁場を薄膜の面内もしくは面直方向に印加できる。

(b) MCD-PEEM の測定配置。

図 4

(a) *hv*=5.3e V で測定した Ni(12ML)/Cu(001)の磁化曲線(試料の仕事関数は 5.15 eV)。磁場反転による MCD 非対称度は 10%。

(b) Ni(12ML)/Cu(001)の MCD 非対称度の光子エネルギー依存性。測定は全電子収量である。 文献[Nakagawa2009_2] より許可を得て転載。

図 5

(a) ニッケルのエネルギー状態密度。hv で光励起される様子を示す。励起された光電子の最 大運動エネルギーは hv であり、最低運動エネルギーは真空準位(もしくはハイパスフィル ター)によって決められる。

(b) バルク(結晶内部)から放出される光電子が表面でポテンシャルの違いにより屈折する 様子。

(c) fcc 格子の逆格子。閾値光電子法により(100)表面から放出される電子は ГX 方向近傍の始 状態を持つものに限られるので、角度分解測定を模する。同様に(111)表面から放出される 電子は ГL 方向近傍の始状態を持つ。

図 6

(a) Cu(001)上のNiにて、膜厚と磁化方向が変化したときのMCD非対称度。Niは膜厚が増加すると~8MLで面内から面直方向へスピン再配列転移する。

(b) Ni 面内磁化膜の MCD 非対称度の光入射角依存。

(c) Ni 面直磁化膜の MCD 非対称度の光入射角依存。破線・点線は Kerr 楕円率の入射角依存 (計算値)。

(d) 円偏光のヘリシティー(h)と反射による円偏光度(Pc)の変化。完全な左円偏光(P_c = +1.0) を Ni 表面に入射したときの、反射波の円偏光度の計算値。入射角が変化すると反射波の円

偏光度も変化し、50°以下ではほぼ右円偏光となって反射される。MCD は *M*・*h* に比例するので、面直磁化膜では反射により増大される。

図 7

パルスレーザー(パルス幅 100 fs、繰り返し 80MHz)励起による MCD-PEEM 像。

(a) 入射エネルギーを 0.2 mW から 7.8 mW に変化させた場合、磁区像が不鮮明なる。

(b) 磁壁位置での MCD 非対称度の変化。(c) 見かけ上の磁壁幅の入射エネルギー依存。

文献[Nakagawa2009] より許可を得て転載。

図8

異なる真空窓の磁区像(上段)への影響と MCD 非対称度(下段)。(a)石英窓、(b)CaF2窓。

図9

(a) Fe/Ni/Cu(001)の MCD-PEEM による磁区像。試料は 9ML Ni の均一膜の上に 2-3ML の不均一な Fe 膜を蒸着してある。上部が 2ML の面直磁化膜、下部が 3ML の面内磁化膜。真ん中付近で面直・面内のスピン再配列転移(SRT)が起き、磁区形状が細かい縞状から幅広い形へと変化している。

(b) 縞状磁区構造における磁壁揺らぎの MCD-PEEM による高速測定結果。i),ii),iii)は 0 ms, 600 ms, 1300 ms に相当。

(c) (b)の i)に実線、破線として示した、隣接する磁壁位置の時間依存。

文献[Kronseder] より許可を得て転載。



図 1



図2





光電子顕微鏡

試料

真空槽







図 5










図 8





X線磁気円二色性(XMCD)顕微鏡の黎明期

兵庫県立大学大学院物質理学研究科 篭島 靖

1. はじめに

X線磁気円二色性(X-ray magnetic circular dichroism: XMCD)測定が、磁性材料の磁 気特性の解析手法の一つとして認知されて久しい感がある。著者らが高エネルギー物理学 研究所(現高エネルギー加速器研究機構:KEK)のトリスタン蓄積リングARの円偏光軟 X線ビームライン NE1Bに、XMCDをコントラストとする走査型X線顕微鏡(Scanning X-ray microscope: SXM)を開発し、1 µmに集光したマイクロビームによって単一ドメイ ンの XMCD スペクトルの取得と磁区構造イメージングに初めて成功したのは、1995年の ことである[1-3])。当時は挿入光源による高輝度の円偏光放射光が利用できるようになって それほど時間が経っておらず、また著者が磁性材料については全くの素人であったため、 XMCD-SXMの開発研究は手探りの状態であった。著者は1994年秋から1995年初夏まで 米国のローレンスバークレー国立研究所(LBNL)のX線光学センター(Center for X-Ray Optics: CXRO)に、当時所長のDavid Attwood 教授の招聘で滞在した。XMCD-SXMの開 発研究はこの留学を挟んだ時期に進めたもので、海外で刺激を受けたことが研究の進展を 加速したと思っている。本稿では当時の奮闘の様子を思い出話風に記すこととする。

2. フォントンファクトリー (PF) の楕円偏光ウィグラー・円偏光アンジュレータ

今手元に「円偏光放射光の利用: KEK Report 87-30, March 1988」[4]がある。131 頁か らなる冊子で、執筆陣は日本の放射光研究を牽引してこられた錚々たる先生方である。そ の巻頭に当時 PF 測定器研究系主幹の岩崎博先生が

「・・・最近、永久磁石を用いた挿入光源装置に関する技術が著しく進歩し、円偏光した 放射光を発生することができるようになってきた。極紫外線領域のみならず、X線領域に いたるエネルギーでこのような光が高輝度で得られるならば新しい可能性が展けるはずで ある。とくにX線領域ではそうである。挿入型光源装置の設計が終わり、すでに製作に着 手している段階において、我々は発生する光の

円偏光度の評価法の研究

と、

円偏光放射光を利用する研究

という課題に真剣に取り組んでいる。・・・」

と記されている。私の記憶が正しければ、当時は偏向電磁石からの円軌道放射の軌道面外 放射の円偏光成分の利用で幾つかの先駆的な分光学研究がなされていたと思う。しかし円 軌道放射の軌道面外放射では光強度が激減するために、挿入光源による高輝度の円偏光放 射光へのニーズが高まっていた。このような情勢下で、1988年に世界初のX線領域楕円偏

1

光光源である EMPW#NE1*がトリスタン蓄積リング(AR)に[5]、真空紫外円偏光光源で ある EMPW#28 が PF リングに設置された。当時私は博士後期課程の大学院生で、訳もわ からず EMPW#NE1 の First light のお祝いの場(AR 実験ホールでの軽い酒席)に居合わ せていた。建設に携わった PF スタッフや他機関の関係諸先生方が大いに高揚していたのを よく覚えている。高輝度の円偏光X線の利用が本格的になる直前のまさに黎明期であった。

3. PF スタッフとなり円偏光ビームラインを担当

1990年3月に筑波大学大学院博士課程工学研究科を修了し、同年4月に幸いにもPF測 定器研究系の助手に採用された。私は宮原恒昱教授の指導のもと、VUV領域の円偏光ビー ムライン BL28Aを担当することとなった。さらに、1年か2年後に軟X線領域の円偏光ビ ームライン AR-NE1B も担当することとなった。着任の際に測定器研究系主幹の岩崎博先 生に「私の博士論文のテーマ(軟X線顕微鏡の研究)を考慮されて、折角円偏光 BLを担当 するのだから円偏光を利用したX線顕微鏡の研究に取り組んではどうか。」と言われたこと を記憶いている。PFの助手になった時、宮原先生の下で円偏光ビームラインを担当するこ とになったことと、岩崎先生に円偏光を利用したX線顕微鏡の研究に取り組んではどうか と提案されたことが、後の XMCD-SXM の開発の契機となった。岩崎先生・宮原両先生と 当時 PFの施設長で私を助手に採用して下さった千川純一先生、X線顕微鏡の研究に導いて 下さった筑波大学時代の指導教官である青木貞雄先生、PFの受託大学院生の受け入れ教官 として放射光の研究分野へ導いて下さった PFの安藤正海先生には、心から感謝している。 人生とは人との出会いに凝縮されるということをあらためて思う。

4. X線磁気円二色性(XMCD)実験

宮原先生は総合研究大学院大学(総研大)の教授を併任されていて、その第一期生とし て武藤貞嗣さん(現在、核融合科学研究所)が在学されていた。助手に採用されてすぐに BL28A の立ち上げを武藤さんと進めた。武藤さんの博士論文のテーマは、ニッケルやガド リニウム薄膜のXMCD測定に関する研究で、装置開発も博士論文の主要なテーマであった。 彼の実験装置の立ち上げに参加しながら、XMCDの知識(あくまでも概念的な)と測定法 を体感し吸収した。後に韓国からの留学生の朴成烈さんも加わった。XMCD発現の原理に 関しては、大阪大学の城先生が放射光学会誌に書かれた解説論文が[6]、X線分光学に明る くない筆者にも非常にわかりやすく書かれていて、繰り返し読み込んだ。XMCDの測定法 を要約すると、入射光の円偏光の向きを右回りあるいは左回りに固定して、各入射エネル ギーに対して試料に印加する磁場の方向を光軸に平行とその逆向きに交互にスイッチしな がら吸収スペクトルを取得する。EMPW は円偏光の向きを反転できる構造になっているの で、試料に印加する磁場の方向を固定して入射光の円偏光の向きをスイッチしながら吸収 スペクトルを取ることも可能であるが、大型装置である EMPW をスイッチするよりは永久

^{*} EMPW は、Elliptical Multipole Wiggler の頭文字である。

磁石による磁気回路で試料に印加する磁場の方向をスイッチングした方がはるかに簡便で 所要時間も少なくて済む。隣り合う逆方向の磁場を有する永久磁石回路をスイッチングす る装置技術を permanent magnet flipper と呼んでいた[7]。この手法が PF における XMCD 測定の標準となった。尚、入射光の円偏光の向きと試料印加磁場の向きをともに固定して 吸収スペクトルを取り、その後いずれかの向きを反転させて吸収スペクトルを取るという 方法もあり得たが、多分ドリフトの中に MCD シグナルは埋没してしまって優位なデータは 取れなかったと思う。

5. XMCD 顕微鏡の先行実験

XMCD が一躍脚光を浴びたのは、1990 年の C. T. Chen らによる米国ブルックヘブン国 立研究所の放射光施設 NSLS に設置されたドラゴンビームライン (Dragon beamline) に おける、Ni-L_{2,3}吸収端での軟X線 MCD スペクトル測定の論文[8]だったと記憶している。 偏向電磁石光源の軌道面外放射における円偏光成分を取り出して用いる方法である。この MCD スペクトルは試料全体からの空間的平均信号なので分光法(spectroscopy)であって、 まだ顕微分光法 (micro-spectroscopy) ないし分光顕微法 (spectro-microscopy)ではなか った。最初の XMCD 顕微鏡は、J. Stöhr らによる CoPtCr 磁気記録ディスクに描いた磁区 構造の観察であった[9]。X線のエネルギーは Co-L_{2,3}吸収端である。B. P. Tonner らが開発 した光電子顕微鏡[10]を用いて 1 μ m の空間分解能が得られている。ちなみにこの論文では、 XMCD ではなく MXCD (magnetic circular x-ray dichroism) microscopy と書かれている。 直後に C. M. Schneider らによって、ドイツの放射光施設 BESSY の SX-700-3 分光器ビー ムラインでの市販の ESCA装置を使った論文も出たが(X線のエネルギーは Fe-L_{2,3}吸収端)、 空間分解能が 10 μ m と必ずしも高くなかった[11]。

Stöhr らの論文も Schneider らの論文も装置技術としては光電子顕微鏡を使った研究で あって、X線光学に基づく顕微鏡(すなわちX線顕微鏡)による磁区特定 XMCD スペクト ルの測定(micro-spectroscopy)もエネルギー特定磁区構造観察(spectro-microscopy)も、 いずれも未報告であった。また、偏向電磁石光源の軌道面外放射における円偏光成分を使 っていたため、光源の輝度という点で円偏光を放射する挿入光源を有する我々のグループ にはX線集光を用いる場合に圧倒的に有利な条件があった。X線集光は最も得意とすると ころなので、走査型の XMCD 顕微鏡(XMCD-SXM)の開発に取りかかることにした。

一方、磁性に関する書籍を調べると[12]、磁区を観察する方法には、①粉末図形法(Bitter 法)、②磁気光学的方法(磁気カー効果やファラデー効果)、③ローレンツ顕微鏡法、④X 線トポグラフィー法、⑤干渉電子顕微鏡法などがあることがわかった。①、②は光学顕微 鏡を用いること、③はX線フィルムを使うことからサブミクロンの空間分解能は原理的に 困難であるので、空間分解能の観点からは XMCD-SXM が優位に立つことは比較的容易で ある。しかし③と⑤は電子顕微鏡なので、空間分解能では全く歯が立たない。ただし透過 型の電子顕微鏡なので、試料が薄膜である必要がある。以上からバルク表面か比較的厚さ のある薄膜をターゲットにしないと、他の手法と差別化できないこともわかった。また、 MCD 信号の大きい 3d 遷移金属の L 吸収端をターゲットとし、AR-NE1B で研究を展開す ることとした。

6. AR-NE1B における XMCD 顕微鏡の開発

X線集光技術には十分な経験もあり自信があったが、XMCD 顕微鏡に適した試料のこと には皆目見当がつかなかった。磁性材料に関して書籍を調べると、磁化方式には面内磁化 や垂直磁化があり、材料も種類も豊富で全く取りかかりの糸口すらつかめない。文献を頼 りに磁気記録メディアのメーカーの研究者とコンタクトを取ったりしたが、ビットサイズ や材料の組成や構造の情報などをなかなか提供してもらえず、これといったデモンストレ ーション用の試料に行きつかなかった。とある大学の著名な教授にもコンタクトを取って みたが、顔を洗って出直してこい的なあしらわれ方で(相応の紹介者を介して来いといっ たニュアンス)、全く相手にされなかった。いずれにしろ、半ば闇雲に XMCD 顕微鏡の実 験に挑んでいたようだが、これがなかなか上手くいかなかった。図1に社団法人日本工業 技術振興協会の「放射光と半導体への応用技術研究委員会」の第 10 回定例会(1993 年 10 月 21 日@KEK)で示した 1 枚の OHP を示す。試料探しに苦労していたこと、表面の保護 層(絶縁体)のよるチャージアップに手を焼いていたことがうかがえる。

困ったときはまず実験すべきと半分諦めモードで、規則的な図形からなるテストパター ンを、縮尺を変えて数種類の模様を紙面に描いて、某社の録画機(□□□□□カム)で市販 の同社製 VTR 用 8 mm テープに録画し、そのテープを切り出して磁区構造を磁気コロイド 溶液による粉末図形法で観察してみた。その時の写真が手元に残っていたのでスキャナー で取り込んだ。それを図2に示す。写真の裏には、94/4/18と日付が記されている。光学顕 微鏡の対物レンズは50×と記されている。接眼レンズの記録はないが多分10×だったであ ろう。幾何学的模様の美しい磁区構造が光学顕微鏡下で観察できたので、磁区のサイズと しては XMCD 顕微鏡に適していた。ただし、多分面内磁化だがそれぞれのパターンがどの 向きに磁化しているかは粉末図形法では全くわからない。テープの磁性材料は、そのテー プのメーカーから総研大に社会人学生として博士課程に在学されていた方がいらっしゃっ たので、わがままを言って構造を調べて頂き、テープの断面構造と組成は入手できた。記 録層が厚さ約200 nmのコバルト(Co):ニッケル(Ni)=80:20の蒸着層であること、そ の上に厚さ約20 nmのCoO層と厚さ数 nmの潤滑層が施されていることがわかった。

試料探しで迷走していたのと装置開発を同時進行していたような気がするがはっきりと は覚えていない。KEKには当時所長留置予算というのがあって、所内公募で結構大きな予 算が配分されていた。安藤先生のアドバイスでその予算に応募したら、多分岩崎先生や安 藤先生の後押しもあったのだと思うが、上手いこと多額の予算を頂けた。多分 1993 年度の ことだと思う。なお当時の所長は菅原寛孝先生あった。

AR-NE1B のビームライン光学系の最後端は後置鏡によって試料上に集光する光学系と

4

なっていたので[13]、そこを2次光源点としてゾーンプレート(ZP)で集光する光学系を 採用した。吸収スペクトルを測定(エネルギーを走査)するので、本来は色収差のない全 反射鏡を用いるべきであるが、ZP は大学院生時代から利用していて使い勝手の良さがわか っていることと(ZPを挿入しても光軸が変わらない)、何よりも手元にあったのでお金が 不要であったことが採用した最大の理由である。研究とは得てして予算規模が境界条件と なるものである。もちろん、手持ちの ZP の場合 3d 遷移金属の L 吸収端をカバーするエネ ルギー領域であれば、さほど焦点がボケないことはちゃんとチェックした。表面敏感な測 定も行えるように、装置の仕様は超高真空対応にすべきだと考えた。従ってターボ分子ポ ンプとインポンプを組み合わせた排気系を採用した。一番悩んだのは試料の精密駆動であ る。精密ステージは、大気圧仕様であればメーカーも種類も豊富にあったが、超高真空対 応の精密駆動ステージというのはなかった(今の無いと思う)。高真空対応ならあったが、 アウトガスの量を考えると避けざるを得なかった。光電子顕微鏡の文献を調べると、H.Ade らが真空外に精密駆動ステージを設け、溶接ベローズを介して精密駆動を真空槽内に伝え る方法を採用していた[14]。ベローズの伸縮方向と直交する方向の駆動の精度が保たれるか 不安があったが、他に良いアイディアが浮かばなかったので同様の方法を採用した。また、 10 nm レベルの精度が可能なようにピエゾ圧電素子を使ったフレクシャーヒンジ(flexure hinge)によるモノリシック平行バネ式微動ステージを設け(作動範囲:±45 µm)、ステッ ピングモーター駆動の粗動ステージ(作動範囲:±12.5 mm)と組み合わせた。宮原先生 のアドバイスで、試料表面をスパッタできるようにイオン銃も取り付けた。これが後に奏 功した。バルクサンプルでは透過強度測定による吸収スペクトル取得は不可能なので、電 子収量を測定することにした。検出器はチャンネルトロンを採用した。光学系調整にはマ イクロチャンネルプレートを画像検出器として採用した。図3に装置の平面図を示す[15]。

図2に示した8mmテープを試料として、再度XMCD顕微鏡の実験に挑んだ。テープの 表面に磁気コロイドを塗布してしまうわけにはいかないので、表面は滑らかな光沢面でし かない。従って、特定の磁区構造を狙うことができない。しかしテープ面上には広い範囲 で磁区構造があることは光学顕微鏡観察でわかっていたので、場所など考えずに適当な場 所で走査型顕微鏡像をとってみた。記録材である蒸着層はCoが80%とドミナントであるこ とはわかっていたので、スペクトル領域はCo-L吸収端を選んだ。その結果、偶然にもL2 吸収端とL3吸収端の強度分布の関係が反転していた。コントラストが低くノイジーではあ るが再現性はあったので、多分MCDコントラスト由来の何らかの構造を捕らえることがで きたとのではないかと考え、放射光学会にポストデッドラインポスターで発表を申し込ん だ。その要旨をスキャナーで読み込んだものを図4に示す。当時の実験ノートを見返すと、 1994年3月28日からの実験であったようだ。放射光学会は1994年5月11日、12日(@ 神戸市)だったので、正規の締め切りには間に合わなかったのだと思う。当時総研大生で 安藤先生が指導教官だった中国からの留学生の王季東さんと一緒に実験していた。王さん はX線顕微鏡の開発で博士論文を書かれた。

 $\mathbf{5}$

この結果は国内の学会発表には許されたレベルかもしれないが、とても論文に耐えうる 代物ではない。万策が尽きて途方に暮れていたが、磁区構造を有する試料を入手するので はなく自分で磁区構造を作ってしまえと発想を転換した。そこで入手済みの VTR 用 8 mm テープに磁区を描くことにした。出入りの業者に頼んでラジカセ(多分廃材)の磁気ヘッ ドを入手し、実験室のあり合わせのステージ類を組み合わせて磁区描画装置を自作した。 その概略を図5に示す。磁気テープを適度な張力で引っ張った状態で固定し、磁気ヘッド を定速で水平移動させる。同時にファンクションジェネレータで一定周波数の電圧を印加 する。この印加電圧の周波数とヘッドの移動速度で磁区の幅を制御できる。顕微鏡のデモ ンストレーションなので磁区サイズは数十ミクロンにすべきは容易に設定できたが、磁区 を描くにあたっては、波形は正弦波がよいか矩形波がよいかあるいは別の波形がよいか、 どれくらいの印加電圧がよいか、周波数と移動速度の組み合わせはどれくらいがよいかな ど、かなりの試行錯誤をした。

苦労した結果期待できそうな試料も作れたので、再度 XMCD 顕微鏡の実験に挑んだ。前 回同様、スペクトル領域は Co-L 吸収端を選んだ。実験ノートによると、1994 年 6 月 6 日 に試料を作って、6月16日から実験を始めている。図6にサンプル取り付けの記録を示す。 記したのは王さんある。サンプル名は「Ⅲ-②」と「Ⅲ-④」で、いずれも磁区のピッチが 10、20、40 µm の 3 種類を 8 mm テープの幅内に収めている。ファンクションジェネレー タの波形はいずれも矩形波で、電圧は②が±0.5 V で④が±1 V であったようだ。磁区ピッ チ 10、20、40 μm はそれぞれファンクションジェネレータで 20、10、5 Hz の周波数であ ったようだ。±5 Hz であれば±10 V でも磁区は描けたが、6.67 Hz や 10 Hz だと±5 V、 ±10Vでは磁区が上手く描けなかったようで「磁場強すぎか?」とノートに記されている。 描いた通りの磁区が観察できたのはこの時の実験が最初であったようだ。まず、ナイフエ ッジ走査法で空間分解能が 1.2 μm であることを確認した(データファイル名: 9406220214=1994 年 6 月 22 日午前 2 時 14 分)。イオン銃でサンプル表面をスパッタリン グするなどいろいろ試行錯誤を繰り返し(残念ながら詳しい記録がない)、漸く6月24日 に磁区構造の取得に成功した。その結果を 1994 年 7 月に New York の Stony Brook で開か れた放射光装置技術会議(SRI94)に発表したことがノートに記されている。また、SRI94 のサテライトミーティング「X-ray Microbeam Techniques and Applications」の主催者に この結果を売り込んだら招待講演にしてくれた。そのいずれかの発表に使ったと思われる 結果を図7に示す。20 μm ピッチの磁区構造が L2、L3 吸収端では観察され互いにコントラ ストが反転していることと、吸収端を外れたエネルギーでは構造がないことがはっきりと わかる結果である。やっとのことで目指した結果に到達した瞬間であった。この時点での 成果を SRI94 のプロシーディングスにまとめた[1]。SRI94 本会議で B. P. Tonner 氏が私の ポスター発表に訪れて祝福してくれた。大変嬉しかったのを覚えている。SRI94 の後、安 藤先生らと LBNL の CXRO を訪問した。このとき CXRO 所長の D. Attwood 氏に CXRO への招聘を受け、同年 10 月から翌 1995 年の 6 月まで Visiting Scientist として CXRO に

滞在することとなった。この期間は実験を行えなかったが、多くの貴重な経験をさせて頂いた。

この研究段階では磁区の構造観察には成功したが、磁区構造のコントラストが低いこと、 単一磁区内のL₂、L₃吸収スペクトルに明瞭な差を検出できていない (単一磁区内でのMCD が検出できていない)など、まだ十分に満足できるものではなかった。イオン銃によるス パッタリングの結果磁区構造が観察できたことから、VTR テープの最表層の潤滑層とその 下層の CoO 層(非磁性)の存在が単一磁区内の MCD の検出を妨げている原因であると推 測された。イオン銃でスパッタリングして深い磁性層に到達するよりは、多少表面が酸化 してバルク金属に比較して MCD コントラストが低下するとしても、最表面が磁性金属であ れば単一磁区内での MCD を検出できるのではないかと考えた。描いた磁区構造の上に磁性 金属の薄膜層を設ければ、テープの磁区構造がそれに転写されるはずである。そこで Ni を テープ表面に蒸着することにした。これなら実験室で簡単にできる。こうして作製した磁 区構造試料の顕微鏡写真を図8に示す。10 µm ピッチの1次元格子状の磁区構造が明瞭に わかる。隣り合う磁区の磁化方向は反転しているが、磁化の向きは同定できない(図左上 部の矢印の意味)。論文によると Ni の厚さは 50 nm であった[2]。この試料を用いて前回と 全く同じ実験を行った。ただし、もちろんスペクトル領域は Co ではなく Ni-L 吸収端であ る。その結果、L2、L3両方のエネルギーにおいて前回の Co 吸収端の時よりもはるかに高い コントラストで磁区構造が観察できた。さらに隣り合う各々の単一磁区内にマイクロビー ム(1.0 µm サイズ)を固定し吸収スペクトルを取ったところ、はっきりと MCD スペクト ルが検出できた。その時の実験ノートを図9に示す。「上記データドバッチリ!」、「MCD スペクトルも OK! 」と記されており、当時の感動が蘇る。X線顕微鏡によって単一磁区内 の MCD スペクトルを検出した最初の例である[16]。図10に XMCD-SXM 像(右)、磁区 特定吸収スペクトル(左上)とその差分スペクトル(左下)を示す。3d 遷移金属の L 吸収 端に特徴的なスペクトルが得られた。この成果は、財団法人高輝度光科学研究センター

(JASRI)の鈴木基寛氏によって解説されているので[3]、そちらも参考にして頂きたい。 この成果により、第5回X線顕微鏡国際会議(XRM1996@Würzburg, Germany)で招待講 演を行った。現在までにそれなりの回数の招待講演を行ったが、個人的には最も充実感の ある講演であった。同じ会議でドイツの P. Fischer らが軌道面外放射の円偏光成分を用い て結像型顕微鏡による高空間分解能磁区構造観察の結果を発表したので[17]、危うく先を越 されるところであった。

7. おわりに

私が PF でX線顕微鏡の研究に取り組んでいた頃(1980年代後半から 90年代前半くらい にかけて)、X線顕微鏡は放射光の研究分野として PF の多くのスタッフの間では必ずしも 市民権を得ていなかった。SPring-8 に代表される第三世代放射光施設が稼働し、空間コヒ ーレンスという用語が頻繁に使われるようになったが、1990年代前半までは少なくとも PF スタッフの間では空間コヒーレンスという概念はほとんど認知されていなかったと思う。 ビームラインワーキンググループという会議が PF 測定器研究系にあり、安藤先生と宮原先 生の助言もあってその会議に顕微鏡専用ブランチビームラインを BL28 に設置することを 提案した。回折限界集光ビームを作るためには、入射フラックスの 99%以上を捨てる必要 があることを何度も説明したが、光を 99%以上も捨てるなどと何を馬鹿げたことを言って いるのだと言われた(私の説明の力量が不十分だったこともあるとは思う)。X線自由電子 レーザーが実現しコヒーレンスという用語が多用されるようになった今では、隔世の感が ある。そういった逆境の中で孤軍奮闘していたことを何人かの先生はちゃんと見ていてく れたのだなと感謝している。この原稿を書くチャンスを与えて下さった JASRI の木下豊彦 先生と大阪電気通信大学の越川孝範先生に心から感謝いたします。「磁気イメージングハン ドブック」[3]に原稿を書くにあたって、私の成果を誠実に評価して下さった JASRI の鈴木 基寛氏に感謝いたします。最後に、青木貞雄先生、安藤正海先生、宮原恒昱先生、岩崎博 先生、千川純一先生、David Attwood 先生にあらためて感謝の意を表して拙文を終わりに します。 参考文献

- Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, J.-D. Wang and S. Aoki, Rev. Sci. Instrum. 66, 1534-1536 (1995).
- Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, J.-D. Wang and S. Aoki, J. Appl. Phys. 80 3124-3126 (1996).
- 3) 日本磁気学会 編「磁気イメージングハンドブック」、共立出版、2010年、190頁
- 4) 円偏光放射光の利用: KEK Report 87-30, March 1988、宮原恒昱、河田洋 編集
- S. Yamamoto, H. Kawata, H. Kitamura, M. Ando, N. Sakai and N. Shiotani, Phys. Rev. Lett. 62, 2672–2675 (1989).
- 6) 城健男:放射光第4卷、333-346 (1991).
- 7) S. Muto, Y. Kagoshima and T. Miyahara, Rev. Sci. Instrum. 63, 1470-1473 (1992).
- 8) C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti, Phys. Rev. B 42, 7262–7265 (1990).
- J. Stöhr, Y. Wu, B. D. Hermsmeier, M. G. Samant, G. R. Harp, S. Koranda, D. Dunham, and B. P. Tonner, Science 259, 658-661 (1993).
- 10) B. P. Tonner and G. R. Harp, Rev. Sci. Instrum. 59, 853-858 (1988).
- 11) C. M. Schneider, K. Holldack, M. Kinzler, M. Grunze, H. P. Oepen, F. Schäfers, H. Petersen, K. Meinel, and J. Kirschner, Appl. Phys. Lett. 63, 2432-2433 (1993).
- 12) 例えば、「強磁性体の物理(下)一磁気特性と応用一」、近角聰信著、裳華房、1984年
- 13) Y. Kagoshima, S. Muto, S. Park, J. Wang, T. Miyahara, S. Yamamoto and H. Kitamura, Rev. Sci. Instrum. 66, 1696-1698 (1995).
- 14) H. Ade, J. Kirz, S. Hulbert, E. Johnson, E. Anderson and D. Kern, Nucl. Instrum. Method. A291, 126-131 (1990).
- 15) Y. Kagoshima, J. Wang, T. Miyahara, M. Ando and S. Aoki, in "X-ray Microscopy and Spectromicroscopy", ed. by J. Thieme, G. Schmahl, D. Rudolph and E. Umbach (Springer-Verlag, Berlin, 1998) pp. III-45-III-53.
- 16) "Magnetic Domains", ed. by A. Hubert and R. Schäfer, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1998, p. 96.
- 17) P. Fischer, T. Eimüller, G. Schütz, G. Schmahl, P. Guttmann and D. Raasch, in "X-ray Microscopy and Spectromicroscopy", ed. by J. Thieme, G. Schmahl, D. Rudolph and E. Umbach (Springer-Verlag, Berlin, 1998) pp. II-69-II-74.

図の説明

- 図1 「放射光と半導体への応用技術研究委員会」で使った OHP
- 図2 粉末図形法で観察した8mmビデオテープに記録された磁区構造。スケールは不明
- 図3 XMCD-SXM 装置の平面図
- 図4 日本放射光学会第7回年会予稿集、p.99.
- 図5 自作した磁区描画装置の概略
- 図6 1994年6月16日の実験ノート
- 図 7 初めて取得に成功した XMCD-SXM 像 (上) と集光ビームによる Co-L 吸収端の吸収 スペクトル (下)
- 図8 Niを蒸着したビデオテープの磁区構造
- 図9 1995年11月15日の実験ノート
- 図10 XMCD-SXM 像、磁区特定吸収スペクトルと MCD スペクトル

MCD 顕微文鏡の話料(デモンストレーション)

- ·MCDが模式ごまる物質·····Fe, Co等 強磁性体
- ・電導性がみまもの、、、金属(チャージアッフ・(アメル)
- ·適当てい大主での磁区を择7もの(数um~+数um) ②面に重直に磁化しているものがベスト ……バブル磁区したビレガーネットの記録(添)本 ていのご change up (2(すう)

@ 面内に磁化しているものでも可



〈面内磁化〉

〈重直磁化〉

※特徴・・・・・・ 磁化方向がユントラストの正剣」をテンス。 1 強土が 1 大社」をテンスト

女現在, Preliminary Experiment を行すっている。

・市販のUTR 〒-フ。(×タルテーフ。) メーFe 等の磁性金属物を描い、ウレタンTFとモバイター とにな性層を形成にいる。… チャーシアッフ。(マレチブ、

・ロタレアスハックトルの経時変化





図2



ポストデッドラインポスター (11-6)

円偏光を用いた軟X線顕微鏡による磁性構造の観察

篭島靖¹⁾,宮原恒昱¹⁾,王 季東²⁾,青木貞雄³⁾,安藤正海¹⁾
高エネルギー物理学研究所放射光実験施設¹⁾
総合研究大学院大学放射光科学専攻²⁾
筑波大学物理工学系³⁾

円偏光の真空紫外光や軟X線による強磁性体及びその合金等の磁気円二色性 (Magnetic Circular Dichroism: MCD)の研究が活発に行われている。現在行われてい る磁気円二色性の測定で得られる情報は、対象とする試料の照射領域全体に渡る平均値 としてのスペクトロスコピックな情報であるが、この手法に顕微鏡の手法を導入すれば、 空間分解能を持つMCDの測定が可能となる。

我々は、これまで開発を続けてきた軟X線顕微鏡にMCDを導入することによって、 磁気テープの磁性構造を観察することに成功した。実験はビームラインAR-NE1B において行った。単色化したX線をゾーンプレートで集光し、試料に照射する。面内磁 化の磁化方向による吸収率の違いを出すために、入射光は試料面に対して60度の入射 角で入射させる。そこから放出される光電子イールドをチャンネルトロンで測定しなが ら、集光スポットに対して試料を機械的に2次元走査し画像化する。空間分解能、すな わち集光スポットサイズは2~3μm程度である。用いた試料はメタルエヴァポレイテッ ド (Metal Evaporated) 8mmビデオテープ¹⁾で、磁性層はコバルト:ニッケル=80: 20の蒸着層である。試料には磁場はかけておらず、従って、録画状態の磁性構造をそ のまま観察したことになる。X線のエネルギーはコバルトのL吸収端とその前後を用い た。

図 a), b) はそれぞれ $Co-L_3$ (778 e V), $Co-L_2$ (793 e V) での光 電子イールドの空間分布である。 $L_3 \ge L_2$ ではその分布のコントラストは明らかに反転 している (Reversed Contrast)。また,吸収端の前後のエネルギーでの像には顕著な構 造は見られなかった。このことは,得られた像は試料の磁化状態の分布を表しているこ とを示している。

1) SONY, E6-HME



















