

①東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 博士課程 1年 新井邦明

②課題番号: 2007A1835 BL17SU

「放射光・光電子顕微鏡法による Ni/NiO の界面における交換結合の温度依存性の研究」

③研究概要(目的及び背景、実験・解析方法、結果、考察、等)

現在、ハードディスクの読み取りヘッドなどの磁気記録デバイスには、反強磁性層の上に強磁性層をのせた系が用いられている。この系を磁場中冷却すると界面で磁気異方性(交換バイアス)が生じる。この交換バイアス系においてネール温度付近に加熱すると、交換バイアスが消失する。このときの加熱温度をブロッキング温度(T_B)という。交換バイアス強度とブロッキング温度の関係は、応用上極めて重要であるため数多くの研究がなされている。Ohldag らにより反強磁性体 NiO の上に強磁性体 Co を蒸着させて 600 K で加熱すると、界面酸化層の膜厚が増加し保磁力が増加するという興味深い報告がなされた[1]。しかし、そこでは加熱により界面において相殺されない Ni スピンが増加すると記述されているのみで、表面と界面の磁区構造の温度依存性など詳しいことは記述されていない。以前の我々の実験結果からネール温度以上に NiO を加熱すると、{001}面の T-wall (結晶歪によるドメイン: T ドメインの磁壁)が増加し、T ドメイン内のスピンによるドメイン (S ドメイン) がマルチドメインからシングルドメインになることが分かっている(図 1)。そのため、上述した保磁力の増加は、加熱によって形成したシングル S ドメインと関係している可能性がある。また、ブロッキング温度において界面酸化層内の Ni スピンが強磁性スピンによってピン止めされているかどうかを調べることは、界面酸化層の転移温度が何 K かを明らかにすることにつながる。そこで本課題では、以下の 2 点を目的として実験を行った。① T_B まで加熱し、このときの界面酸化層内のスピン状態を調べる。② T_B まで加熱し加熱前後の T ドメイン、S ドメインと界面酸化層内のスピン状態と Co の磁区構造の変化を調べる。T ドメインの観察は、0 K 吸収端における線二色性(LD)[2]と光電子顕微鏡(PEEM)を組み合わせた手法を用いて行った。S ドメインの観察は Ni L₂ 吸収端における磁気線二色性(MLD)、界面酸化層内の Ni スピン状態は Ni L 吸収端における磁気円二色性(MCD)、Co の磁区は Co L₃ 吸収端における MCD を用いて観察を試みた。NiO のスピン容易軸は{111}面に平行に配列しているので、水平偏光と垂直偏光を用いる場合、NiO(111)表面を用いて測定した方が、より詳細に S ドメインを観察できると期待できる。そのため、初めに NiO(111)清浄表面の作製と T と S ドメインの観察を試みた。ビームタイム前に NiO(111)表面を研磨し大気中で 1300 K で 3 時間アニールを行い、酸素雰囲気中(1.2×10^{-2} Pa)で 1000 K で 30 分間アニールを行った[3]。しかし、LEED パターンおよび T と S ドメイン構造を観測することは出来なかった。この原因は、研磨によるストレスにより T ドメインが微細化しているためだと考えられる。

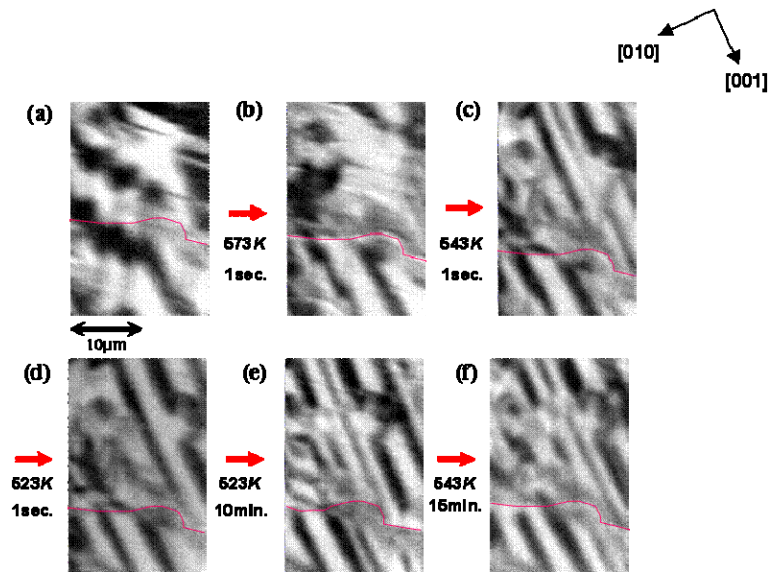


図1 ネール温度以上に加熱前後のNiO(100)のTとSドメイン。Ni L₂吸収端での二色性を用いて観察した。赤い線は試料の同じ場所を示す表面傷である。(a)は加熱前のイメージで、(b)は573 Kで1秒間加熱した後の室温で取得したイメージ。

そこで、水平偏光、垂直偏光および円偏光を用いて NiO(100)表面上の T と S ドメインの観察を行うことにした。円偏光は水平偏光と垂直偏光のコヒーレントな重ね合わせであり、PEEM の場合、試料表面に対する放射光の入射角度は試料表面に対して 90 度ではないので、円偏光を用いても MLD および LD を観察できる。図 2 は、水平偏光、垂直偏光および円偏光を用いたときの LD を反映したイメージを示している。図 2 を見ると、円偏光による LD イメージは、水平と垂直偏光による LD イメージの重ね合わせであることが分かる。さらに、交換結合状態を調べるために、T と S ドメインのアサインを試みた。図 3 は、水平偏光、垂直偏光を用いた場合の O K 吸収端における LD を反映したイメージ(a,b)と Ni L₂ 吸収端における MLD を反映したイメージ(c,d)である。これまでに D.Alders らによって、Ni L₂ 吸収端における MLD 強度は、 $3\cos^2\theta - 1$ (θ は偏光ベクトルとスピン容易軸の間のなす角度)に依存し、Ni L₂ 吸収端の 2 つの吸収ピークの photon energy の小さい方(868.6 eV)は、 θ が 90 度である配置のときに吸収ピークが増大し、大きい方(869.9 eV)では θ が 0 度であるときに吸収ピークが増大すると報告されてきた[4]。したがって、結晶方位と光の偏光ベクトルの向き、および Ni L₂ 吸収端における MLD イメージの強度コントラストから、S ドメインをアサインできるはずである[5]。そのため、水平偏光と垂直偏光を用いた場合の結晶方位に対する 12 種類の S ドメインの MLD 強度を計算して(図 4(a)-(c))、MLD イメージ(図 3(c)&(d))の強度と比較した。図 4 の横軸の面内角度は、放射光波数ベクトルの(001)面への射影成分が[001]のとき面内角度 0 度、[010]のとき-90 度である。放射光の入射方向と結晶方位から、図 3 のイメージ群は、面内角度 20 度と決定した。図 3(c)のイメージ内の緑線内の領域を見ると比較的暗いコントラストをもつので、弱い強度があり、(d)のイメージでは比較的明るいコントラストをもつので、強い強度がある。水平偏光と垂直偏光を入射した場合で、このような強度変化を示すのは、図 4(a)-(c)から S43([11-1]方向に結晶歪方向をもつ T ドメイン内に[2-11]方向のスピン容易軸をもつ)だと考えられる。同様な方法で図 3(c)&(d)に示されているイメージの青い線で囲まれた領域内

のSドメインをアサインすると、S11([11-1]方向に結晶歪方向をもつTドメイン内に[11-2]方向のスピ容易軸)だと考えられる。しかし、図3(a)&(b)のLDを反映したコントラストを見ると青線と緑線で囲まれた領域は、同じTドメインを示しているため、Sドメインのアサインに矛盾が生じている。これは、O 2p軌道と結合しているNi 3d軌道の異方性によるLDコントラストが、Ni L₂吸収端における二色性イメージ(図3(c)&(d))に含まれているためだと考えられる。このためNi 3d軌道の異方性によるLDの寄与を定量的に見積もる必要がある。Ni 3d軌道はO 2p軌道と180度結合しており、結合方向は<100>方向である。これまでの我々の実験結果からOK吸収端におけるLDを反映したイメージは、最大4種類のコントラストが存在することが分かっており、結合方向を足し合わせると、Tドメイン内の軌道の異方性方向は<111>方向であると考えられるので、O 2p軌道とNi 3d軌道の異方性方向は結晶歪方向と平行であると期待できる。図4(d)&(e)は、上記の仮定をした場合の面内角度に対するTドメイン内のLD強度の計算結果である。この計算結果と図3(a)&(b)のイメージのコントラストを比較するとTドメインのアサインをすることは出来ないため、OK吸収端におけるLDを反映したイメージの割り算を逆にするとTドメインのアサインが可能である。図3(a)の暗いコントラストをもつドメインがT1([111]方向に結晶歪をもつ)またはT2([-111]方向に結晶歪をもつ)であり、図3(b)で最も明るいコントラストをもつTドメインがT4([11-1]方向の結晶歪)、最も暗いコントラストをもつTドメインがT3([1-11]方向の結晶歪)に対応している。このアサインの結果は、これまでに報告されてきたバルクで存在するT-wallの形成面とコンシステントである[6]。上述したTドメインのアサインの結果から緑と青の線で囲まれたドメインはT3ドメインであると考えられる。また、図4(a)&(c)の計算結果と比べると、図3(c)&(d)に示されているT3ドメイン内に存在するSドメインは、S32([121]方向に容易軸をもつ)とS31([-112])であると考えられるが、T3ドメイン内に2種類のSドメインしか存在していないため、完全なアサインが出来ているかを確かめるためには、1つのTドメイン内に3種類のSドメインが存在する領域で、計算結果と比べる必要がある。

さらにCoをのせた系での加熱によるSドメインの変化と、Coをのせていない系でのSドメインの変化を比較するために、まずNiO(100)における加熱前後の観察を行った。その結果、ネール温度(523K)より低い408Kで加熱した前後で比較するとTドメイン及びSドメインが変化した(図5)。したがって、NiOの磁区構造は、加熱により容易に変化することが分かった。

次に、交換結合状態を調べるために、NiO表面上にCoを蒸着した。しかし、CoのL₃吸収端の吸収していたためにCoの磁区出来なかった。この原因は、の悪さだと考えられる。

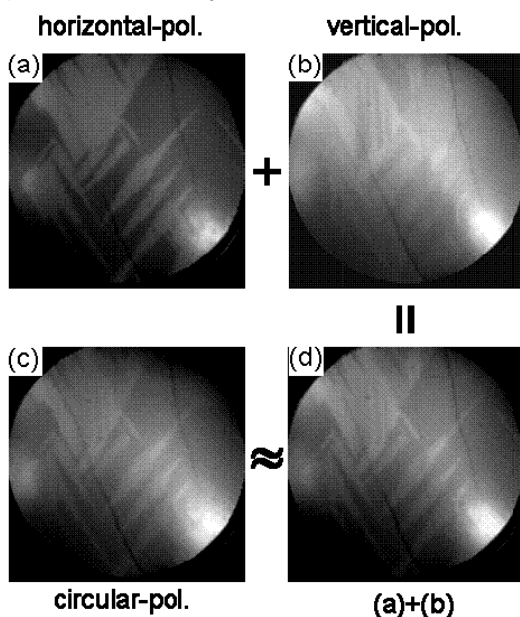


図2 水平偏光(a)、垂直偏光(b)、円偏光(c)を用いたときのOK吸収端におけるLDを反映したイメージ。(d)のイメージは、(a)と(b)のイメージを足し合わせたものである。円偏光によるイメージ(c)は(d)のイメージとほぼ同じである。

交換結合状態を調べるためにCoを蒸着した。しかし、CoのL₃吸収端の吸収していたためにCoの磁区出来なかった。この原因は、の悪さだと考えられる。

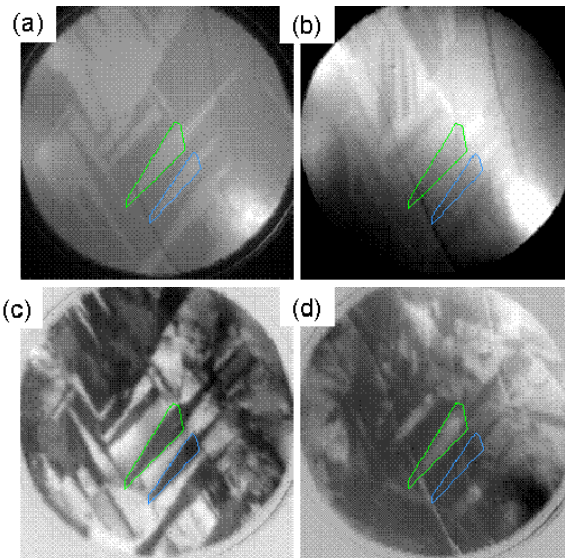
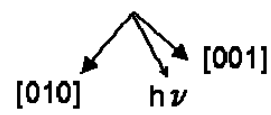


図3 水平偏光(a)と垂直偏光(b)を用いた場合のO K吸収端におけるLDを反映したイメージ。(c)と(d)は、水平と垂直偏光を用いたときのNi L₂吸収端におけるMLDを反映したイメージ。これらのイメージの視野は全て30 μ mである。

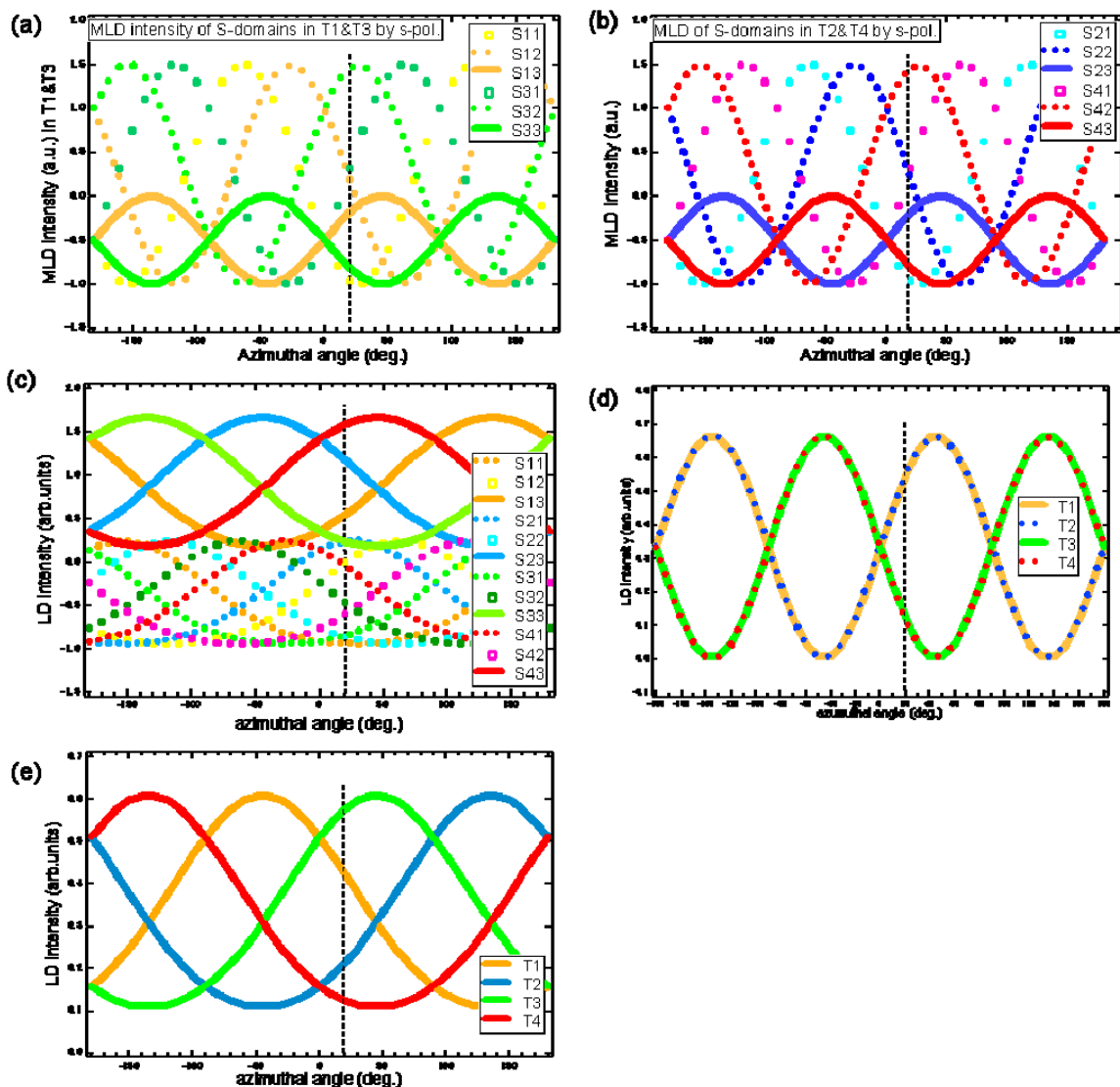


図4 水平偏光((a)と(b))と垂直偏光(c)を用いたときの結晶方位に対する12種類のSドメインのMLD強度の計算結果。横軸の面内角度は、放射光の波数ベクトルの(100)面に対する射影成分が[001]のとき0度、[010]のとき90度である。(d)と(e)は、^{Before laser pulse}水平と垂直偏光を用いたときの^{After}4種類のTドメインのLD強度の計算結果である。

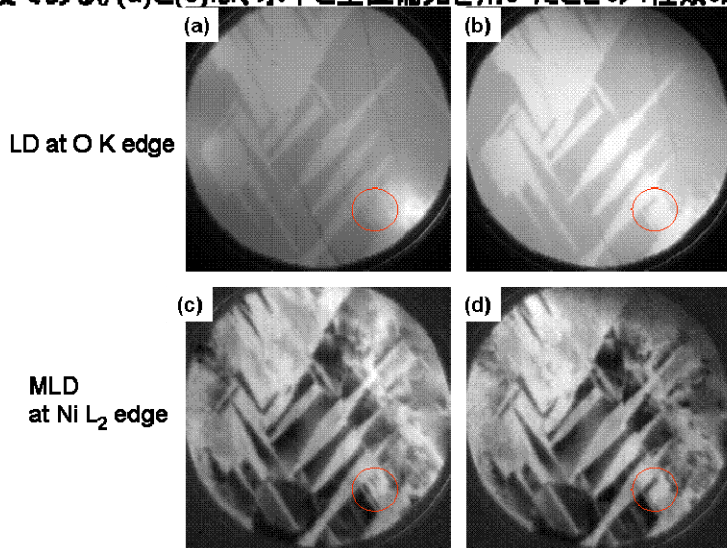


図5 水平偏光を用いたときのO K吸収端におけるLDイメージ(a&b)とNi L₂ 吸収端におけるMLDイメージ(c&d)。加熱前のイメージ(a&c)と408 Kに加熱した後のイメージ(b&d)である。赤線で囲まれた領域は加熱前後で磁区が変化した場所を示している。これらのイメージは室温で観察され、視野は30 μmである。

また本課題では、後置鏡を使用した場合と使用しない場合の放射光のスポットサイズを確認した。微小領域の磁区構造などを観察する場合、放射光のスポットサイズを絞った方が光の強度が大きいので有用であるが、大きな磁区（例えばTドメイン）を観察する場合、比較的大きな視野（ $\sim 50 \mu\text{m}$ ）の方が有用である。後置鏡を使用した場合、スポットサイズは、およそ $30 \mu\text{m}\Phi$ であるが、使用しない場合およそ $200 \mu\text{m}\Phi$ である。後置鏡使用前後で、光のスポットは 10 mm 以上動いた (PEEM 試料位置)。

参考文献：

- [1] Ohldag et al., Phys. Rev. Lett. **87**(2001)247201.
- [2] T.Kinoshita et al., J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 2932(2004).
- [3] Barbier et al., Phys. Rev. B **62**, 16056(2000).
- [4] D.Alders et al., Europhys. Lett. **32**, 259(1995); D.Alders et al., Phys. Rev. B **57**, 11623(1998).
- [5] F.U.Hillebrecht et al., Phys. Rev. Lett. **86**. 3419 (2001).
- [6] W. L. Roth, J. Appl. Phys. **31**(1960)2000.