スピン偏極 STS による Fe ナノドメインの観察

山崎 篤志・菅 滋正

大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻 ☎ 560-8531 大阪府豊中市待兼町 1-3

(2004 年 9 月 13 日受理)

Spin-polarized Scanning Tunneling Spectroscopy for Imaging the Magnetic Domains of Fe Nano-magnets

Atsushi YAMASAKI and Shigemasa SUGA

Graduate School of Engineering Science, Osaka University
1-3 Machikaneyama, Toyonaka, Osaka 560-8531

(Received September 13, 2004)

We report on the recent progress of our study concerning the spin-polarized scanning tunneling spectroscopy (SP-STS). The magnetic states of Fe nano-magnets on W(001) substrates have been investigated. We have observed single-domain and vortex states in the nano-magnets. The micromagnetic simulation well reproduces the magnetic contrast observed in a nano-magnet and demonstrates that the contrast originates from the vortex state in the ground state. The high-resolution magnetic images enable us to experimentally determine the boundary between the single-domain and vortex states. The boundary directly observed with SP-STS is consistent with theoretical predictions. SP-STM with an AC magnetic field for Mn/Fe(001) performed by Wulfskel et al. is also introduced, indicating that a 180-degree domain wall is formed in the frustrated region in the anti-ferromagnetically coupled Mn layers. Furthermore, the expansion of the domain wall width in the region with increasing the Mn thickness has been obviously observed. Finally, we touch on potentials and remaining issues for industrial application of SP-STS/STM.

1. は じ め に

現在、基礎研究だけでなく我々の生活に身近な産業分野においてもナノテクノロジーが眼に見えない形で活用されている。表面でのナノさらにはサブ・ナノメートルの構造に関する情報が得られる走査トンネル顕微鏡 (STM) は、これらの分野の研究・開発を行う上で欠かすことができない手法となっている。スピン偏極 (SP-) STM では、STM の探針と試料間の障壁である真空をトンネルする電子のスピン偏極依存性を測定することにより STM の長所である優れた空間分解能を保ちつつ試料表面でのスピンに依存した磁気的情報が得られる。これはふたつの強磁性体を絶縁体で挟んでいる場合に、トンネル過程でスピンの向きが保存されるという仮定 (この仮定は第一近似として成り立つ) の下でふたつの強磁

性体の相対的な磁化の向きに依存してトンネルコンダクタンスが変化するというトンネル磁気抵抗効果に基づくものである¹⁾。1990 年に Wiesendanger らによって行われた初期の実験では CrO₂ バルク探針を用いて Cr(001) 表面において面内磁気モーメントの向きに関する情報を含む信号が得られたが²⁾、構造と磁性に由来する信号を分離することはできなかった。その後、いくつかのグループによって、GaAs 探針の円偏光によるスピン励起を利用する方法で実験が行われたが、コントラストが弱く他の効果による付加的なコントラストも含まれることが像の解釈を困難にしており、研究手法の確立には至らなかった。その後、1998 年に Bode らはスピン偏極走査トンネル分光 (SP-STS) により、トンネル分光スペクトルから試料表面での磁気情報のみを取り出すことに成功した³⁾。一方、Wulfskel らは Johnson と Clarke により提案された交流磁場により探針の磁気モーメントを制御する磁場変調 SP-STM⁴⁾により磁気コントラストを得る

E-mail: yamasaki@decima.mp.es.osaka-u.co.jp

ことに成功している⁵⁾。本稿では、著者らが行った SP-STs による実験を報告すると共に、相補的な実験手法である磁場変調 SP-STM による実験結果についても触れたい。

2. 測定手法

2.1 SP-STs

SP-STs では、探針と試料のスピン偏極したバンドの間のトンネル過程での微分コンダクタンス dI/dU ($\propto n_t n_s (1 + P_t P_s \cos \theta)$) : n_t, n_s は探針および試料の状態密度, P_t, P_s は各スピン偏極率, θ は探針と試料での磁気モーメントの相対角度) をロックインアンプにより検出してマッピングを行う。測定では一般的にスピン偏極した表面準位付近にバイアス電圧を設定する。このスピン偏極した表面準位は、現在までに Cr, Mn, Fe, Co, Gd において見いだされている。現在、行われているスピン分解できる STM 測定の多くは Bode らが提唱したこの SP-STs によるものであり、国内外を併せて数グループが磁気像を報告している⁶⁻⁹⁾。

SP-STs 用の探針には通常の STM に用いられる多結晶タングステン (W) 探針上に Fe や Gd などの強磁性体薄膜をコートさせる。Fe などの強磁性体バルク探針を用いた場合には、探針からの漏れ磁場の影響が大きく、試料の磁気構造を変化させてしまうため 10 原子層 (ML) 程度の強磁性体薄膜を W 探針上に成膜して用いる必要がある。強磁性体の他に Cr や Mn などの反強磁性体薄膜を用いることもできる。この場合には、探針に使われている磁性体から出る漏れ磁場が試料に与える影響をさらに小さくすることができる¹⁰⁾。また、用いる磁性体やその膜厚を変化させることによってスピンの量子化軸を面内、面直と選択することが可能であるので、測定対象の磁性状態に適した材料を使うことが重要である。実際に探針を作製する場合には、探針には化学エッチングした多結晶 W を用い、超高真空チェンバー内で約 2200 K まで加熱することにより表面酸化膜を除去して、その後磁性体を蒸着させる。加熱する前には直径 20~50 nm ほどであった探針の先端は、加熱することにより溶けて 1 μm 程度まで丸くなる。トンネル電流の安定性や後述する高い空間分解能が得られていることから考えると、電子のトンネリングは探針表面上にあるわずかな突起部などから起こっているものと考えられる。Fe を 3~10 ML ほど蒸着して作製した磁性探針は試料面内の磁化方向に敏感であることが知られている⁶⁾。試料面に対して垂直方向の磁化成分を検出する場合には 7~9 ML の Gd や 25~45 ML の Cr などを用いると良い⁶⁾。これらの物質の容易磁化方向は薄膜の表面での磁気異方性に由来す

る。SP-STs では、試料および探針表面の吸着分子や酸化層によるトンネル電子のスピン散乱を極力防ぐために、強磁性薄膜探針の作製と測定は超高真空中で行うことが望ましい。一般に STM 測定では原子分解能が期待されるが、SP-STs による測定での分解能は 0.5 nm 程度といわれており⁶⁾、この手法を用いた原子分解能での磁気コントラストはいまだ報告されていない。

2.2 磁場変調 SP-STM

一方、Wulfhekel らは CoFeSiB 多結晶で作られた探針にコイルを用いて交流磁場を印加し、トンネル電子のスピン向きを制御してロックインアンプで信号を取り出すことで、構造と磁性の寄与を分離した信号を得た⁵⁾。CoFeSiB 多結晶は交流磁場を印加する際に問題となる磁歪が小さく、飽和磁化や保磁力も小さいことからこの測定に適している。探針を針状にすることで面直磁化敏感、リング状にすることで面内磁化敏感の信号が得られる。リング状の探針を用いる場合には、漏れ磁場の影響を小さくすることができる一方で、現在のところリングの外径が 2 mm と大きく、トンネルする場所の空間的な制御が困難であるため、原子レベルで平坦なテラスに対してのみイメージングに成功している。スピン依存部の信号強度を増すために Fe を数原子層蒸着する場合もある。報告されている面内の空間分解能は、針状、リング状探針を用いた場合それぞれ約 10 nm⁵⁾と 1 nm 以下¹¹⁾である。この手法の優れた点は、探針の磁化方向を能動的に制御しているため試料の磁気モーメントの向きについてある程度の情報が得られること、SP-STs と異なりスピン依存信号には状態密度の情報が含まれていないため⁵⁾表面の電子状態が異なる場合においてもスピン分解した測定が可能であること等があげられる。

3. 観測例

3.1 Fe/W

先にも述べたが、SP-STs により磁気コントラストを観測するには試料のスピン偏極している表面準位を利用する。そのためには Fe 単結晶表面での表面準位がどれくらいのエネルギーに位置しているかを知る必要がある。Fig. 1 (a) には、鉄の針状単結晶 (Whisker) の磁気光学カー効果顕微鏡像を示す。磁気モーメントは試料の面内長手方向に配列しており、試料の上半分と下半分の色が異なることから図中白点線上には 180° 磁壁があることがわかる。この上下それぞれの磁区に Fe をコートした STM の探針を移動させ、その場所で SP-STs スペクトルを測定すると Fig. 1 (b) のようなスペクトルが得られる。2 本のスペクトルは共にバイアス電圧が 0.13 V 付近にピークを持つが、その強度は大きく異なっ

Fig. 1. (a) Magneto-optical Kerr microscope image of an Fe whisker. The broken line denotes the magnetic domain wall. (b) STS spectra of the same Fe whisker. Solid/dotted lines show spectra with the parallel/antiparallel orientation between the in-plane component of the magnetization of the tip and the whisker.

Fig. 2. (a), (b) Topographic and (c), (d) magnetic dI/dU images of Fe nano-magnets (marked by ellipses) with magnetic single-domain states ($U = 0.20$ V).

ている。これは、探針上の Fe の $3d$ バンドから試料の面直方向に真空中まで伸びた Fe の $3d_{3z^2-r^2}$ 軌道がつくる少数スピンバンドへのスピンに依存したトンネリングに由来するものである¹²⁾。すなわち、これと同じ電子構造（すなわち同じ結晶構造）を持つ試料表面をスキャンし、このバイアス電圧付近で微分コンダクタンスをマッピングすることにより、試料の磁化方向の空間分布が得られる。つぎに、SP-STIS によって明らかにされたナノ磁石の磁気構造を示す。

試料として用いるナノ磁石は W 基板上に Fe のナノ粒子を自己組織化させることで作製することができる。W

(001) 基板上に Fe を 4~7 ML 蒸着し、その後約 800 K でアニールすることによって 2 ML の Fe “カーペット”の上にナノ磁石が形成される¹³⁾。ナノ磁石の大きさや高さは、Fe を蒸着する厚さとアニールを行う温度によって制御することができる。Fig. 2 には、作製したナノ磁石の 30 K での形状像と磁気像を示す。これらの像は面内磁気モーメントに敏感な Fe 薄膜探針を用いて観測された。またこれらはスキャン中の同一ライン上に観測された画像であるため、探針の状態は変化していないと考えられる。Fig. 2 (a) と (b) の白楕円内に示した形状像からこのナノ磁石の上面はステップのない原子レベル

で平坦になっていることが確認できる。この上面での結晶構造は、バルクでの bcc 型の Fe のそれと同じであることが低速電子線回折 (LEED) 測定により確認されている¹³⁾。このような平坦な面において磁気像で観測されるコントラストは磁気的な起源を持つ (逆に、後に示す磁気像の左上やナノ磁石の縁などに観測される強い (白い) 強度は試料の段差による探針の変位が原因であり、磁気的な信号ではないことに注意したい)。Fig. 2 (c) と (d) には、これらナノ磁石の磁気像を示している。それぞれのナノ磁石内では、ほぼ均一な dI/dU の強度が見られることから、これらのナノ磁石内では単磁区になっていると考えられる。一方で (c) と (d) のナノ磁石はそれぞれ黒っぽく、あるいは白っぽくみえることから、これらの磁区内の磁気モーメントは探針のそれに対して、それぞれ別の向きであると考えられる。また、W 基板上にエピタキシャル成長した Fe カーベットの電子状態は格子の伸びなどによりナノ磁石の表面 (すなわちバルク Fe の表面) のそれとは異なっている。このため、磁気像のコントラストから Fe カーベットとナノ磁石の相対的な磁気モーメントの向きを議論することはできない。

つぎに、これよりもサイズの大きいナノ磁石について

みしてみる。Fig. 3 (a) と (b) には、それぞれ形状像と磁気像を示した。磁気像では、ナノ磁石表面の右上の強度が弱く (黒く)、左が強く (白く) なっていることがわかる。またその間に挟まれた領域はこれらの中間色になっている。このことから磁気モーメントの向きは、このナノ磁石の表面において探針のそれと平行、反平行になっているだけでなく連続的に変化していることがわかる。このナノ磁石のサイズと形状を考慮したマイクロ磁気シミュレーションにより得られた第一準安定状態と基底状態での磁気コントラストがそれぞれ Fig. 3 (c) と (d) のようになる。マイクロ磁気シミュレーションにより得られた基底状態のコントラストは実験結果を良く再現しており、この状態は Fig. 3 (d) 中に示したように磁気モーメントが面内で渦のように配置されたボルテックスであることがわかる (ただし、実験では探針先端の磁気モーメントの面内での向きは決定されていないので、渦の回転方向はわからない)。ボルテックスの中心付近のコントラストが実験の磁気像において鮮明に観測されないのは、探針からの漏れ磁場による影響と考えられる。このボルテックスの中心は、漏れ磁場が小さく且つ面直の磁気モーメントに敏感な Cr 薄膜探針を用いて観測することができる¹⁴⁾。これよりもサイズの小さなナ

Fig. 3. (a) Topographic and (b) magnetic dI/dU ($U=0.15$ V) images of the Fe nano-magnet indicating a vortex state. (c) and (d) show calculated single-domain (1st meta-stable) and vortex (ground) states for the Fe nano-magnet. The lines schematically illustrate the orientation of the magnetization. The sense of rotation of the vortex is unknown since the absolute orientation of the tip magnetization is not known.

Fig. 4. A phase diagram of the magnetic states for different diameters and thicknesses of the Fe nano-magnet on W(001). Diameter of the magnet is defined as the average of the two axes of the elliptic shape. Solid and open circles show the single-domain and vortex states, respectively. The solid line is the dividing line following the calculation by Cowburn et al.

ノ磁石の磁気像をみるとボルテックスのようなコントラストが観測されず、Fig. 2 (c) と (d) のように単磁区になっているものが観測される。数十 nm 程度の小さな磁石では直接交換相互作用が支配的になり、その磁石の内部では単磁区が形成される。一方、それより大きい磁石では静磁エネルギーの利得により漏れ磁場を減少させるように磁気モーメントが配列する傾向が強くなり、磁束の閉じたボルテックスが形成される。ボルテックスと単磁区の観測されたナノ磁石をサイズごとにプロットしていくと単磁区の形成される限界領域が見えてくる (Fig. 4)。今回得られた単磁区が形成されるナノ磁石のサイズは平均の直径 120 nm、高さ 6 nm 以下であった。これは、マイクロ磁気シミュレーションにより得られる単磁区形成限界領域とよく一致している¹⁵⁾。磁気記録では信号制御の観点から、記録素子は単磁区が理想的である。この単磁区が形成されるサイズの限界はマイクロ磁気シミュレーションにより求められていたが、この実験は SP-STs により直接的にこの境界を決定することが可能となったことを示している。

3.2 Mn/Fe

つぎに Wulfhekkel らが行った磁場変調 SP-STM の実験について紹介する¹¹⁾。彼らは、Fe(001) 上に成長させた層状反強磁性秩序を示す Mn 薄膜に対して単結晶 Fe のステップエッジ上に誘起される Mn スピンのフラストレーションを磁場変調 SP-STM により調べた。Mn は Fe

Fig. 5. Schematic diagram of a spin alignment and frustrated region in the anti-ferromagnetic Mn layer across an underlying Fe step edge.

(001) 上にはじめ 2 次元成長した後 3 次的に成長する。面内では強磁性秩序を示す Mn の磁気モーメントは層間では反強磁性的に結合することが知られている (Fig. 5)。この際に、Fe のステップエッジ上にフラストレーションが発生する。これに類似した Cr/Fe(001) の系において、理論的な立場からこのフラストレーションが発生する箇所において 180° 磁壁の存在が予測されている。

Fig. 6 (a) と (b) には、300 K で面内磁気モーメントに敏感なリング型 CoFeSiB 探針を用いて観測した平均厚さ 11.9 ML の Mn 薄膜の形状像と磁気像を示す。形状像の中で島の表面において観測されているわずかな段差 (Fig. 6 (c)) は、Fe と Mn の格子定数の違いによるものである (Fig. 5 参照)。磁気像を見ると、Mn の島とカーベットの間では反強磁性結合により磁気モーメントが反転しているために強いコントラストがみられる。さらに上下の内向き矢印で示した Fe のステップエッジを境にコントラストが反転している。この部分が上述のフラストレーションが発生する箇所に相当する。白線で示した箇所の断面 (Fig. 6 (d)) からわかるように、この箇所では、磁壁幅が約 4.5 nm の 180° 磁壁が形成されている。通常観測されるバルク試料の磁壁幅が数十から数百 nm であることを考えると、Mn/Fe(001) 系のフラストレーション部位に見られる 180° 磁壁の幅は非常に狭い。Fig. 7 には見積もられた磁壁幅の Mn 膜厚依存性を示す。Mn 膜厚の増加に伴い、磁壁幅が直線的に増加していくことがわかる。膜厚が薄い場合には Mn スピンが Fe 基板によって強くピン止めされていると考えられる。Mn 膜厚を厚くしていくとバルクの磁壁幅に近づいていくことが予測されるが、Mn 膜厚を 20 ML よりも厚くすると α -Mn に構造相転移してしまうため、これを検証することは容易ではない。

ここで紹介した Mn/Fe(001) に関する SP-STM の実験については SP-STs によっても同様の実験を行うことが原理的には可能であり、実際に層状反強磁性秩序のコントラストは報告されている⁷⁾。ただ、世界の多くのグループが Bode の SP-STs 方式を採用する中で、異なる

Fig. 6. (a) Topographic and (b) magnetic images of 11.9 ML Mn on Fe(001) obtained by SP-STM. The arrows in (a) and (b) indicate a step edge in the Fe substrate. (c) and (d) show line profiles across the frustrated region along the lines which are indicated in (a) and (b), respectively.

Fig. 7. Mn thickness dependence of the domain wall width in the frustrated region. The Mn thickness is shown in ML and equivalent nm. Solid line denotes a linear fit to the experimental data. The dotted line indicates the linear function with the slope of twice the film thickness.

実験手法により SP-STs 実験の検証が可能であることを示したこの実験は非常に意義深い。

4. む す び

SP-STs による Fe ナノ磁石の磁気イメージングについて

て述べるとともに、SP-STM による最近の研究の一例を紹介した。SP-STs について測定手法自体は確立された感があるが、研究対象となる物質は一部の遷移金属薄膜などごく限られたものとなっている。この手法を、現在の磁性研究の対象として多数を占める化合物に適用する場合には、SP-STs では非磁性探針を用いて試料表面を十分に調べ化学的な寄与を明確にした上で磁性探針を用いた測定を行い、これらを注意深く比較することによって磁気的な寄与を調べる必要がある。また、トンネル過程での吸着分子や酸化層によるスピン散乱を抑えるために SP-STs/STM 測定は超高真空中で極めて清浄な試料と探針を用いて行わなければならない非常に手間と時間とさらには蓄積された経験が必要とする実験である。これらの点は、デバイス開発などで求められる高いスループットを妨げている。SP-STs/STM がナノ構造の磁性体表面の研究に対して非常に有力であることは疑いようのないことである。この実験手法をさらに発展させるために、これらの実践上の問題の解決が今後の課題である。

本稿の内容は、W. Wulfhekel 氏 (Max-Planck 微細構造物理学研究所)、R. Hertel 氏 (同)、J. Kirschner 教授 (同) との共同研究である。

文 献

- 1) M. Julliere: Phys. Lett. A **54**, 225 (1975).
- 2) R. Wiesendanger, H.J. Güntherodt, G. Güntherodt, R.J. Gambino and R. Ruf: Phys. Rev. Lett. **65**, 247 (1990).
- 3) M. Bode, M. Getzlaff and R. Wiesendanger: Phys. Rev. Lett. **81**, 4256 (1998).
- 4) M. Johnson and J. Clarke: J. Appl. Phys. **67**, 6141 (1990).
- 5) W. Wulfhekel and J. Kirschner: Appl. Phys. Lett. **75**, 1944 (1999).
- 6) M. Bode: Rep. Prog. Phys. **66**, 523 (2003).
- 7) T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, G.M.M. Heijnen, T. Mizoguchi and H. van Kempen: Phys. Rev. Lett. **90**, 056803 (2003).
- 8) T. Kawagoe, Y. Suzuki, M. Bode and K. Koike: J. Appl. Phys. **93**, 6575 (2003).
- 9) A. Yamasaki, W. Wulfhekel, R. Hertel, S. Suga and J. Kirschner: Phys. Rev. Lett. **91**, 127201 (2003).
- 10) A. Kubetzka, M. Bode, O. Pietzsch and R. Wiesendanger: Phys. Rev. Lett. **88**, 057201 (2002).
- 11) U. Schlickum, N. Janke-Gilman, W. Wulfhekel and J. Kirschner: Phys. Rev. Lett. **92**, 107203 (2004).
- 12) J.A. Striscio, D.T. Pierce, A. Davies and R.J. Celotta: Phys. Rev. Lett. **75**, 2960 (1995).
- 13) W. Wulfhekel, F. Zavaliche, R. Hertel, S. Bodea, G. Steierl, G. Liu and J. Kirschner: Phys. Rev. B **68**, 144416 (2003).
- 14) A. Wachowiak, J. Wiebe, M. Bode, O. Pietzsch, M. Morgenstern and R. Wiesendanger: Science **298**, 577 (2002).
- 15) R.P. Cowburn, D.K. Koltsov, A.O. Adeyeye and M.E. Welland: Phys. Rev. Lett. **83**, 1042 (1999).