直線偏光光電子顕微鏡による反強磁性体磁区の観察

木 下 豊 彦^{*1}

Domain Imaging of Antiferromagnetic Materials by Photoemission Electron Microscope with Linearly Polarized Lights

Toyohiko KINOSHITA^{*1}

^{*1}Japan Synchrotron Radiation Research Institute, SPring-8, 1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Hyogo 679-5195, Japan

(Received April 10, 2014, Accepted May 27, 2014)

A magnetic domain imaging method using linearly polarized light is introduced. Combination of linearly polarized synchrotron radiation and photoemission electron microscope (PEEM) allows us to image domains not only for ferromagnetic (FM) but also for antiferromagnetic (AFM) materials. Since element specific observation is possible, magnetic properties of specified atoms in interfaces are easily investigated. This method is utilized for the study of the magnetic coupling at interfaces between FM surface and AFM substrates. Examples of imaging for AFM domains on NiO(001), and Fe/NiO(001) interface systems are introduced. The spin orientation in domain walls of AFM NiO is also observed.

1. はじめに

本特集のトピックである「磁気・スピニメージングの最前線」では、様々な微小領域の磁気イメージング¹⁾について紹介されている。放射光を用いた磁気イメージングは、最近特に注目をあびており、特に、吸収スペクトルに現れる磁気円二色性 (X-ray Magnetic Circular Dichroism; XMCD) 現象と顕微鏡観察を組み合わせた手法で数多くの成果が報告されている²⁾。元素選択性や時間分解観察による磁化反転ダイナミクスの研究など、放射光ならではの研究が展開されている。最近我々のグループの成果を中心にレビュー論文をまとめたのでそちらも参照していただきたい³⁾。本特集でも、鈴木氏、大槻氏によって、XMCD を利用した磁気イメージングが紹介されている。一方、直線偏光を利用した磁気イメージングについては、一般的には可視光領域における Kerr 顕微鏡がよく知られているが、放射光の直線偏光を利用した磁気イメージングについては、XMCD を用いたものに比べるとあまりなじみがないと思う。しかし、反強磁性体の磁区観察、反強磁性体と強磁性体の界面の研究など、ほかの研究手法にはない特徴もある。ここでは、我々のグループで行ってきた、直線偏光を用いた磁気イメージングの原理と、応用例を紹介していきたい。特に、代表的な反強磁性体である NiO の単結晶 (001) 表面に対する観察結果、さらにその基板の上に強磁性 Fe 薄膜を蒸着した系の観察結果を中心に紹介する。なお、我々は光電子顕微鏡 (Photoemission Electron Microscope; PEEM) を用いたイメージング研究を展開している。

2. 電子顕微鏡による磁区観察の原理

ここでは、PEEM を用いてどのように磁区観察を行うことができるのか、原理と装置の概略などについて紹介する。この箇所は大槻氏の解説と重複があるかと思うがご容赦いた

だきたい。

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。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 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。Fig. 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

Fig. 1 Principle of magnetic domain imaging using PEEM with polarized light. Because the numbers of photoelectrons change depending on the relation between the polarized vector of the light and the magnetic moment inside of each domain, the domain contrast also changes as the sample is rotated.

^{*1} 高輝度光科学研究センター利用研究促進部門 (〒679-5198 兵庫県佐用町光都 1-1-1)

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，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: MCP）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．我々の使用してい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⁴⁾．

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．つまり，通常の磁気情報に加え，元素の情報，化学結合の情報を含めたデータをイメージとしてとらえることができる．磁気状態観測のためには，大槻氏が紹介する XMCD，あるいは本稿で紹介する磁気線 2 色性（X-ray Magnetic Linear Dichroism; XMLD）⁵⁾ と呼ばれる効果と光電子顕微鏡を組み合わせた観測手法が用いられる．

一番よく使われるのが，XMCD で，この詳細は大槻氏の解説などを参照していただくことにして，ここでは割愛する．XMLD に関しては，磁区内の磁気モーメントと励起光の直線偏光の電気ベクトルとの関係で 2 色性が起こる現象を利用する．XMLD 現象を直感的に理解する場合には XMCD からの類推で考えてみるとよい．

XMCD の場合，量子化軸（磁気モーメントに平行な向き）に対し，左右円偏光が平行に入射したときに， $\Delta m = 1$ か -1 の光学遷移（吸収）を起こすことが起源になっている（ここで m は軌道角運動量の量子化軸方向の成分である）．量子化軸に対して垂直な電気ベクトルを持つ直線偏光を入射したときには $\Delta m = 0$ の遷移になる．今，Fig. 2 のような実験配置で 2 つの磁区を持つ反強磁性体に直線偏光を入射することを考える．右の磁区に対する偏光の関係は，量子化軸と光の入射方向が平行になっているので XMCD の状況と似ている．ただし，直線偏光なので，左右の円偏光がコヒーレントに重なった状況を想像するとよい．磁性体の場合， $\Delta m = \pm 1$ の遷移が重なって起きると考える．一方，左側の磁区に

Fig. 2 Experimental geometry for XMLD. Depending on the relationship between the polarization vector of the incident light and the magnetic moment of domains, the numbers of the emitted electrons proportional to the absorption coefficient are different. The case of an antiferromagnetic sample is indicated.

対しては $\Delta m = 0$ の遷移が起こることになる．吸収端付近では，XMCD が磁性体の交換相互作用とスピン軌道相互作用に基づいて起こるのと同様，直線についても左右の磁区に対して吸収強度に差が生じる．これが XMLD である．XMLD の大きさは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， $3 \cos^2 \theta - 1$ に比例して変化することが知られているが⁵⁾，最近の研究では，この式に従わず，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．上の説明でも述べたが，XMLD は強磁性体のみならず反強磁性体の磁区観測にも応用可能な手法である．XMLD のコントラストは XMCD のそれと比べるとかなりコントラストが小さくなるので，磁区観測に応用された例は多くはない．しかし，反強磁性体の磁区観測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．

具体的に，どのようにして XMLD と PEEM を組み合わせた手法による反強磁性磁区観測を行うのかを説明する．

Fig. 3 は，反強磁性体 NiO の Ni L_2 吸収端における吸収スペクトルである．NiO の XMLD は Ni L_2 吸収端において強く現れる．図中 2 つのピークが観測されているが，それぞれの光エネルギーのところで PEEM 像を取得し，その差分あるいは割り算を行うと XMLD を反映した反強磁性磁区像が得られる（Fig. 4）．サンプルを回転したり，入射する直線偏光の向きを変えたりすると，イメージのコントラストが変わる．それは磁区内の磁気モーメントと偏光ベクトルの関

Fig. 3 X-ray absorption spectrum (XAS) of NiO in Ni L_2 edge region. PEEM images in Fig. 4 and Fig. 7(e) are acquired at photon energies indicated by arrows.

Fig. 4 Method to obtain antiferromagnetic domain by using XMLD. Two images were obtained at photon energy positions at A and B in Fig. 3. And then the image at B was divided by that at A. The XMLD image reflects the spin-domain (S-domain) of antiferromagnetic NiO.

係が変化しているため、その情報を詳細に解析すれば、磁気モーメントの情報を得られることになる (Fig. 1 参照)。

補足として、円偏光しか利用できないビームラインにおいても XMLD が観測可能なことを説明しておく。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るため、試料表面に対して90度入射ではない場合、XMLD を観測できる。これは、垂直偏光による XMLD への寄与よりも水平偏光による XMLD への寄与が大きくなるため、水平および垂直偏光による XMLD が相殺されないことを意味する。一方、試料表面に対して90度入射の場合、水平偏光と垂直偏光による XMLD の寄与は相殺されるため、XMLD を観測できない。実際、本稿で紹介する Fe/NiO 界面の研究は、SPRING-8 の円偏光ビームライン BL25SU で行われた。円偏光で、強磁性体の最上層と界面、反強磁性体の基板をすべて観測した結果である。

3. 反強磁性体 NiO の磁区観察

上で紹介したように、PEEM と XMLD を組み合わせる手法では、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うため、XMLD 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。Nolting らは、反強磁性 LaFeO_3 薄膜を SrTiO_3 (001) 基板上に成長させ、さらにその上に蒸着した Co がどのように反強磁性磁区と結合しているかを調べた⁶⁾。また、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⁷⁻⁹⁾。第2章でも、いかにして XMLD を利用した反強磁性磁区観察を行うかの事例として示したが、ここでは我々が行ってきた NiO に関する研究を紹介する。

Fig. 5 に NiO の結晶構造を示す。NaCl 構造を持ち、劈開面は (001) 面である。NiO はネール温度が 523 K の反強磁性体であり、1 枚の (111) 面内にスピンの強磁性配列し、隣り合う (111) 面同士が反強磁性的に逆方向のスピンの配列を持つ構造をとっている。図では小さい丸印が Ni 原子に相当し、そのスピンの向きを模式的に矢印で示してある。大きい丸印で示した O 原子はスピンをもたない。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。(菱面体構造になる。) 全部で4種類の $\langle 111 \rangle$ 方向があるため、4種類の双晶 (Twin) が生じることになる。この Twin に由来する磁区を T-domain と呼ぶ。(111) 面内には3方向のスピン容易軸 $\langle 112 \rangle$ 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とになる。この50年間、様々な手法 (光学反射¹¹⁾, X 線トポグラフィ¹²⁾ など) での磁区観察が試みられてきたが、空間分

解能やコントラストともに十分でなく、肝心の磁区内のスピン方向の決定などもできていなかった。

NiO の反強磁性磁区は第2章に述べた手法で観測した。単結晶表面を大気中で劈開したのち、直ちに超高真空に保たれた PEEM 測定チャンバーに移送することで観測を行っている。こうした試料表面の準備方法でも、NiO に対する PEEM 観察に関しては比較的汚染の影響は出にくく、十分良好な画像が得られることがわかっている。

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 (Fig. 6 中2つの矢印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^{13,14)}。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。この現象は、磁性に由来しない直線偏光の2色性 (XLD) によるものとして説明できる。このことは以下の実験で確認した。すなわち、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、つまり、鉄蒸着によってスピンは交換相互作用で

Fig. 5 Schematic illustration of antiferromagnetic spin structure in NiO. The circles indicate Ni^{2+} ions with up and down spins. The spin directions are parallel to the $[2\bar{1}1]$ direction. The black circles indicate O^{2-} ions. The spins couple ferromagnetically within the same $\{111\}$ plane.

Fig. 6 X-ray absorption spectrum (XAS) of NiO in O K edge region. PEEM images in Figs. 7(a) and 7(c) are acquired at photon energies indicated by arrows¹⁴⁾.

その向きを変えうるが、結晶歪それ自体はほとんど変化しないことを確かめた。また、清浄な NiO 表面に対する観察において、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。

Fig. 7 にこのようにして得られた NiO(001) 表面からの磁区コントラスト像を示す¹⁴⁾。(a)は、酸素の K 吸収端で取得した T-domain の情報を反映したイメージである。異なる磁区同士の境界は磁壁に相当するが¹⁵⁾、この T-wall は直線的に走っていることがわかる。(c)はサンプルを回転し、光の入射方向を変えて測定したイメージである。偏光方向と磁区内のモーメントの関係が変わったために、コントラストは(a)のそれと異なっていることがわかる。(b)と(d)はそれぞれのイメージに対応して磁区境界を描いた模式図である。(e)に示すのが Ni の L 吸収端を用いた S-domain の情報を反映したイメージである。T-domain のそれと比べると、コン

Fig. 7 PEEM images obtained by the division of the two images acquired at the two photon energies (higher $h\nu$ image/lower $h\nu$ image) with p -polarized light. The experimental geometries are shown in Figs. 1 and 2. (a) T-domain structures observed by XLD-PEEM at O K edge in Fig. 6. The arrow indicates the incident soft X-ray ($h\nu$) direction projected onto the surface plane. (b) Schematic domain structures of (a). The lines indicate the boundaries of the four T-domains. The uppermost domain corresponds to the single T-domain focused on in the text and (e) and (f). (c) T-domain structures observed at the azimuthal angle different from that in (a). (d) Schematic domain structures of (c). (e) S-domain structures observed by XMLD-PEEM at Ni L_2 edge shown in Fig. 3. (f) Schematic domain structures of (e). The areas surrounded by solid lines (S1, S2, and S3) correspond to three S-domains in the single T-domain mentioned in (b). In (b), the parts of the T-domain boundaries are out of the field of view by an effect of the sample rotation, but the same area can be seen¹⁴⁾.

トラスト、形状ともにはるかに複雑であることがわかる。磁区の境界 (spin-wall; S-wall) も T-wall にくらべると、直線的ではなく、複雑な形状をしている。(f)の模式図で示したが、中ほどの一つの T-domain の中に 3 種類のコントラストが見え、それらが 3 種類の S-domain に対応しているものと考えられる。

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。第 2 章で述べたように、XMLD 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 $3 \cos^2 \theta - 1$ に比例することが知られている (これは球対称なアトミックなモデルに基づく計算による)。つまり、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。実際に、Fig. 7 のような像を偏光に対してサンプルを回転し、数多く取得したうえで、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が、結晶の対称性を考慮した強度計算が必要であることが分かった¹⁶⁾。そこで、その効果を取り入れた計算結果との比較を試みた。

Fig. 8 (a) XMLD asymmetry as a function of sample rotation angle at Ni L_2 edge in the three domains [shown in Fig. 7(f)] observed with s-polarized light. The projective components of the propagation vector of the incident light to the surface plane are the $[001]$ direction at 0° and the $[0\bar{1}0]$ direction at 90° . (b) As in (a) but with p -polarized light. (c) Calculated absorption intensity ratios (higher/lower energy) of Ni L_2 edge with s-polarized light by the cluster calculation containing full multiplet splitting including crystal symmetry. The results of the three spin easy axes, namely, $[\bar{1}21]$, $[2\bar{1}1]$, and $[112]$, are presented. (d) As in (c) but with p -polarized light. (e) Calculated XMLD asymmetry in the case of the above three easy axes with s-polarized light. The $(3 \cos^2 \theta - 1)$ dependence in the atomic multiplet theory is shown. (f) As in (e) but with p -polarized light¹⁴⁾.

その様子を **Fig. 8** に示す. (a) と (b) は, 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の軸が完全に決定された. すなわち, **Fig. 7** のイメージで観察されている 3 つの磁区, S1, S2, S3 のスピン軸はそれぞれ $[\bar{1}21]$, $[2\bar{1}1]$, $[112]$ に対応しているものと決定された. 図 (e), (f) のこれまでに XMLD に対して提唱されていたアトミックモデルで計算された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.

最近, 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. PEEM の持つ空間分解能で十分観測が可能な幅である. **Fig. 7, 8** 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¹⁵⁾. 結果を **Fig. 9** と **10** に示す. **Fig. 9** は NiO に存在しうる 2 種類の T-wall (異なる 2 つの T-domain の間にある磁壁), (010) T-wall と (011) T-wall である. それぞれ, 酸素の K 吸収端と, Ni の L_2 吸収端で測定している. 楕円で囲った箇所が典型的な磁壁である. **Fig. 10** に示すのは S-wall (異なる 2 つの S-domain の間にある磁壁) である. 上述したように, NiO のスピン軸は $\langle 112 \rangle$ 方向であるので, 1 つの T-domain 内に 3 種類の磁区

が存在しうる. 3 つのドメイン間のスピンのなす角度は 120° (ないし 60°) であるので, 図の 180° S-wall は奇異に感じられるかもしれない. **Fig. 5** で示したように, NiO では一つの (111) 面内では強磁性的にスピンが配列し, その隣の (111) 面で逆向きのスピン配列をとる. したがって, 磁壁に隣接する 2 つの S-domain が同じ種類のものであっても, 磁壁のところでたまたま (111) 面が 1 枚分ずれた形で隣接していれば, それは 180° S-wall になる. このように, **Fig. 9, 10** に示した磁壁は NiO に存在しうるすべての磁壁であり, 初めてその観測に成功したものとなっている.

Fig. 11 には上述した磁壁のうち最も典型的な (001) T-wall を詳細に観測した結果を示す. (a) が, (001) T-wall とそれに隣接する T-domain のスピンの関係を模式的に示したものである. 図中, 隣接するドメインは S-domain として記述されているが, これは, それぞれ異なる T-domain の中に存在する S-domain であり, スピン方向を定めるためにこのような表示をした. 磁壁中心部におけるスピンを示した図になっている. この磁壁中心部のスピン方向は, **Fig. 7, 8** と同様にサンプルを回転しながら磁壁のコントラストが周りの磁区に比べてどのように変化するかを詳細に観測することによって決定した (たとえば S-wall の場合の角度を回して光の入射角を変えた際のコントラストの違いが **Fig. 10** (a) (b) と (c) (d) に見て取れる). **Fig. 11** (b) の図は **Fig. 9** (b) の (010) T-wall の赤線部分を引いた箇所のコントラストのラインプロファイルである. (c) に示す図のように両側の T-

Fig. 9 (a) XLD-PEEM image recorded with p -polarized light at the O K edge. The T-domains of NiO are observed. (010) T-walls are located in the areas surrounded by elliptic curves. (b) XMLD image recorded with s -polarized light at the Ni L_2 edge. The T- and S-domains of NiO are observed. The observed area is the same as in (a). (010) T-walls are located in the areas surrounded by elliptic curves. Along the tick mark, we derived the line profile in **Fig. 11**. (c) Schematic illustration of (a). (d) Same as in (a) but for different area and for s -polarized light. (011) T-walls are located in the areas surrounded by elliptic curves. (e) Same as in (b) but observed in same area in (d). (011) T-walls are located in the areas surrounded by elliptic curves. (f) Schematic illustration of (d)¹⁵⁾.

Fig. 10 (a) XMLD-PEEM image of NiO recorded with s-polarized light. The areas marked with a cross and a triangle correspond to S-domains with spin axes illustrated in (d). The area surrounded by an elliptic curve is a 180° S-wall. The crystallographic axes are also indicated. (b) Same as in (a) but with different light incidence angle. (c) Schematic illustration of (a) and (b). (d) Schematic illustration of easy spin axes of S-domains marked by cross and of S-domains marked by triangle in (a)–(c). (e) Same as in (a) but for different observed area. The areas marked with a circle and a square correspond to S-domains with spin axes illustrated in (h). The area surrounded by an elliptic curve is a 120° S-wall. (f) Same as in (e) but with different light incidence angle. (g) Schematic illustration of (e) and (f). (h) Schematic illustration of easy spin axes of S-domains marked by circle and square in (e)–(g)¹⁵⁾.

domain のスピン方向 $\langle 112 \rangle$ 方向から磁壁中心部の $[010]$ に向けて徐々にスピンの回転していくと仮定して XMLD コントラストを計算した結果も図中に実線で示した。このように、この磁壁では数百 nm の幅の中でスピンの回転していく様子が決定された。他の磁壁についても同様にスピン方向の決定がなされている。現段階で NiO の磁壁構造についてこれ以上詳しいことは分かっていない。シミュレーションでスピン方向の再現を試みたが、今のところ一部はその振る舞いを再現できているものの、すべての磁壁については満足のいく結果は得られていない。たとえば、反強磁性相互作用を考慮する際に、最近接の原子の相互作用だけでなく、もう少し遠い原子の相互作用まで含めた、より複雑な考察が必要になるのではないと思われる。

4. 界面の情報

MRAM や、ハードディスクなどの実際に実現している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ている。第 3 章で述べたように、実デバイスで利用されている Mn 系の反強磁性基板の XMLD-PEEM による磁区観察を行うことはできないものの、観測しやすい Collinear な反強磁性基板の代表例として、NiO を基板とし、その上に強磁性体を蒸着した系の観測例がいくつか報告されている。Ohldag らは^{17,18)}、反強磁性体

の NiO の上に、Co 薄膜を成長させ、XMLD で下地の NiO の反強磁性磁区を観測し、XMCD 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 Fig. 4 や 7 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重要な情報を与えている。我々は Co の代わりに Fe 薄膜（厚さ ~ 0.9 nm）を作成し、その磁気構造の解析を試みた¹⁹⁾。

Fig. 12にその様子を示す。Fig. 12で得たデータでは直線偏光は用いず、すべて SPring-8 の BL25SU ビームラインでの円偏光を用いて取得した。第 2 章で紹介したように、円偏光でも X(M)LD 現象は観測可能（ただし、s 偏光に対するイメージと p 偏光によるイメージの重畳になる）である。図には、酸素 K 吸収端 XLD で取得した NiO 基板の T-domain, Ni の L_2 吸収端 XMLD で取得した S-domain, Fe L_3 吸収端 XMCD で取得した最上層 Fe 薄膜の強磁性磁区、また Ni L_3 吸収端 XMCD で取得した、界面（Fe, Ni, O の混ざった状態と考えられる）の強磁性磁区の情報が示されている。光の入射方向に対して試料を回転し、それぞれの磁区内でのスピン方向を決定した結果も示している。それらの結果をまとめ

Fig. 11 (a) Schematic illustration of spin structures of (001) T-walls obtained by comparison of theoretical and experimental XMLD asymmetry as a function of the sample rotation angle. The spin axes of the T-wall is for the center of the wall as shown in (b) and (c). The adjacent domains are the S-domains. These S-domains are in the different T-domains as described in the text. (b) The circles are the experimental line profile of Fig. 9(b). The solid line corresponds to the XMLD contrast calculated for the spin axes shown in (c). (c) Schematic illustration of spin structures in (001) T-wall shown in (a). Here, the axes are projected onto the (001) plane¹⁵.

たものを **Fig. 13**に模式的に示した。Fig. 12, 13を見て分かるように、3種類のS-domain上ではそれぞれ異なる向きのFeのスピン方向をとっていることがわかる。しかもそれは、下地のスピン方向と平行ではない。界面における交換エネルギーとFe薄膜自身の持つ異方性との競合でこのような状況が起こっているものと考えられる。

Fig. 12ではよくわかりにくい(b)の中の楕円で囲った領域では下地のNiO基板のスピンの向きがFe蒸着によって変化しており、周りの磁区とはコントラストが異なっている。この変化については、NiOの清浄表面上に *in situ* でFe蒸着を行い、蒸着前後での同じ観察位置でのコントラスト変化から確認を行っている。NiOでは先に述べたとおり、異方性はそれほど強くなく、Feの存在でスピンの向きが比較的容易に変えられたものと考えられる。

このような薄膜蒸着による基板のスピンの modulation は別の系でも観測された。Fig. 14に示したのは、NiOの上に

Fig. 12 PEEM images of the Fe/NiO(110) system. The direction of the light incidence is shown. (a) Image obtained using the XLD effect at the O K edge, which reflects T-domain structure of the NiO substrate. The solid curve indicates the boundary of a single T-domain. (b) Same as in (a) but using XMLD effect at the Ni L_2 edge, which reflects S-domain structure. Three S-domain (S1, S2, and S3) boundaries in the single T-domain in (a) are shown. As shown by the area surrounded by the elliptic curve, the spin direction seems to change from its initial direction for the bare NiO substrate owing to Fe evaporation. (c) Image obtained using XMCD effect at the Ni L_3 edge, which reflects interface (mixture phase of Fe and NiO) domain structure. The spin directions of the interface region on the three S-domains of the substrate are indicated. These spin directions are determined from the angle dependence of XMCD. (d) Same as in (c) but using XMCD effect at the Fe L_3 edge, which reflects outermost Fe domain structure¹⁹.

Fig. 13 Schematic model of spin configuration of Fe/NiO system. The spin directions of the outermost Fe film and the interface region are shown together with the bulk antiferromagnetic S-domains of the NiO substrate¹⁹.

Cr金属を楔状に厚さを変えながら蒸着し、Cr膜厚に依存した下地NiOの磁区パターンの変化の観測を行ったものである²⁰。PFのBL-2Cの直線偏光を利用して、観察を試みた。Spring-8での観測に比べると、空間分解能は劣るもののNiOの磁区の様子は観測できている。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

Fig. 14 PEEM image for NiO antiferromagnetic domain contrast of Cr/NiO(100) at Ni L_2 and their corresponding topographical images. The overlayer Cr wedge thickness is indicated²⁰⁾.

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生じないが、奇数層の時には正味のモーメントが残ることになる。このモーメントと、下地の S-domain のスピンの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。

このように、表面に金属がついたままの状態ですぐに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り、今後さらにいろいろな系への応用が期待される。

5. 終わりに

PEEMの利用が広まってきた理由の一つは、多くの放射光施設に装置が備え付けられ、一般的なユーザー利用に解放されてきたことが大きい。特に、その偏光特性を利用した微小領域の磁気状態観察の分野で多くの成功を収めてきている。本稿で紹介したように、元素選択的に強磁性体、反強磁性体、それらの界面を同時に観測できるのは、他ではないこの手法の特色であろう。ここでは触れなかったもののポンプ & プローブ手法と組み合わせた時間分解測定による磁気ダイナミクスの観測も進んでいる²¹⁾。今後の発展がますます期待される。

ここで紹介したのはつくばの Photon Factory (BL-2C)、播磨の SPring-8 (BL17SU, 25SU) で行った研究成果の一部であり、数多くの共同研究者(新井邦明, 奥田太一, 田中新, 孫海林, 柿崎明人, 遠山尚秀, 上野信雄, 原沢あゆみ, 福本恵紀, 郭方准, 大河内拓雄, 小嗣真人, 中村哲也, 室隆桂之, 松下智裕, 大浦正樹, 大橋治彦, 仙波泰徳, 三俣千春の各氏ら引用文献12~15, 19, 20の共著者の皆様), 施設スタッフの皆様の努力に負うところが大きい。ここに感謝を申し上げる。また, PF, SPring-8 双方の課題を実施した成果である (PF (2002G182), JASRI (2007B2007, 2007A1835, 2008A1723, 2008A1726, 2008A2052, 2009A1667)。また, 科学研究費補助金基盤研究(B) 15360017, JST-CREST「ナノ界面技術の基盤構築」の「超高輝度放射光機能界面解析・制御ステーション」(代表・尾嶋正治)の援助を得て進めた研究成果の一部である。

〔文 献〕

- 1) いくつかの磁気イメージング手法に関しては「磁気イメージングハンドブック」, 日本磁気学会編 (共立出版, 東京, 2010) に紹介されている。
- 2) 放射光を利用した XMCD などの内殻分光に関しては, 「内殻分光」, 太田俊明・横山利彦編著 (アイピーシー, 東京, 2007) などを参照していただきたい。
- 3) T. Kinoshita, K. Arai, K. Fukumoto, T. Ohkuchi, M. Kotsugi, F. Z. Guo, T. Muro, T. Nakamura, H. Osawa, T. Matsushita and T. Okuda: J. Phys. Soc. Jpn., **82** (2013) 021005.
- 4) F. -Z. Guo, T. Muro, T. Matsushita, T. Wakita, H. Ohashi, Y. Senba, T. Kinoshita, K. Kobayashi, Y. Saitoh, T. Koshikawa, T. Yasue, M. Oura, T. Takeuchi and S. Shin: Rev. Sci. Instrum., **78** (2007) 066107.
- 5) G. van der Laan, B. T. Thole, G. A. Sawatzky, J. Goedkoop, J. C. Fuggle, J. -M. Esteve, R. Karnatak, J. P. Remeika and H. A. Dabkowska: Phys. Rev. B, **34** (1986) 6529.
- 6) F. Nolting, A. Scholl, J. Stöhr, J. W. Seo, J. Femyeyrine, H. Slegwart, J. -P. Locquet, S. Anders, J. Luning, E. E. Fullerton, M. F. Toney, M. R. Scheinfein and H. A. Padmore: Nature, **405** (2000) 767.
- 7) F. U. Hillebrecht, H. Ohldag, N. B. Weber, C. Bethke, U. Mick, M. Weiss and J. Bahrtdt: Phys. Rev. Lett., **86** (2001) 3419.
- 8) T. Kinoshita, T. Wakita, H. -L. Sun, T. Tohyama, A. Hara-sawa, H. Kiwata, F. U. Hillebrecht, K. Ono, T. Matsushima, M. Oshima, N. Ueno, Y. Saitoh and T. Okuda: J. Phys. Soc. Jpn., **73** (2004) 2932.
- 9) I. P. Krug, F. U. Hillebrecht, M. W. Haverkort, A. Tanaka, L. H. Tjeng, H. Gomonay, A. Fraile-Rodríguez, F. Nolting, S. Cramm and C. M. Schneider: Phys. Rev. B, **78** (2008) 064427.
- 10) S. Saito, M. Miura and K. Kurosawa: J. Phys. C, **13** (1980) 1513.
- 11) M. Ando: Phys. Status Solidi A, **24** (1974) 473.
- 12) T. Kinoshita, T. Wakita, H. -L. Sun, T. Tohyama, A. Hara-sawa, H. Kiwata, F. U. Hillebrecht, K. Ono, T. Matsushima, M. Oshima, N. Ueno, Y. Saitoh and T. Okuda: J. Phys. Soc. Jpn., **73** (2004) 2932.
- 13) K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, M. Kotsugi, K. Fukumoto, T. Ohkuchi, F. -Z. Guo, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, A. Kakizaki and T. Kinoshita: Phys. Rev. B, **85** (2012) 174401.
- 14) K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, M. Kotsugi, K. Fukumoto, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, A. Kakizaki and T. Kinoshita: J. Phys. Soc. Jpn., **79** (2010) 013703; **79** (2010) 038001.
- 15) K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, M. Kotsugi, K. Fukumoto, T.

- Ohkouchi, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, A. Kakizaki, C. Mitsumata and T. Kinoshita: Phys. Rev. B, **85** (2012) 104418.
- 16) A. Tanaka and T. Jo: J. Phys. Soc. Jpn., **63** (1994) 2788.
- 17) H. Ohldag, T. J. Regan, J. Stöhr, A. Scholl, F. Nolting, J. Lüning, C. Stamm, S. Anders and R. L. White: Phys. Rev. Lett., **87** (2001) 247201.
- 18) H. Ohldag, G. van der Laan and E. Arenholz: Phys. Rev. B, **79** (2009) 052403.
- 19) K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, K. Fukumoto, T. Hasegawa, T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, A. Kakizaki and T. Kinoshita: J. Appl. Phys., **110** (2011) 084301.
- 20) H.-L. Sun, T. Tohyama, T. Okuda, A. Harasawa, N. Ueno and T. Kinoshita: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., **144-147** (2005) 753.
- 21) T. Kinoshita T. Ohkouchi, H. Osawa, K. Arai, K. Fukumoto, T. Okuda, M. Kotsugi, T. Muro, T. Nakamura and T. Matsushita: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., **185** (2012) 389.