

レーザー励起光電子顕微鏡を用いた FeRh 薄膜における反強磁性ドメインの研究

物質系専攻 47-136014 小林 正和

指導教員：辛 埴（教授）

キーワード：反強磁性ドメイン、FeRh 薄膜、磁気線二色性、光電子顕微鏡

【研究目的】

フラッシュメモリーや DRAM を中心とした半導体デバイスを置き換える次世代記録デバイスの開発が盛んに行われている。中でも磁気記録デバイスへの期待は高く、最近、日米の半導体メーカーが次世代の磁気メモリの量産技術を共同開発すると報じられた。現在、実用化に向けた研究が最も盛んな磁気メモリは強磁性体を用いた磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) である。MRAM は電荷の蓄えでなく磁化の向きで情報を記憶するため、コンピュータの電源を切ったとしてもデータが消えない性質（不揮発性）があり、一般的なメモリにおいて必須である電荷配給の必要がない

ため省エネルギーである。しかし、MRAM が情報の読み書きに使用している強磁性体材料は、外場の影響を受けやすい。さらに、強磁性体自体からの漏れ磁場のために各強磁性ビットの静磁的干渉が起こり、高集積化が難しいことが問題となっている。これを解決する1つの全く新しいアプローチとして、反強磁性スピンを利用したメモリが最近報告がされた[1]。図1に反強磁性体メモリの動作原理の詳細を示す。このメモリは強磁性体の磁化の向きで情報を記憶する従来の強磁性メモリとは異なり、反強磁性体のスピン量子化軸の向きで情報を記憶する。材料は反強磁性-強磁性相転移を有する物質を利用して書き込みを行う。この反強磁性体メモリは、従来の強磁性メモリとは異なり外場の影響を受けにくく、さらに漏れ磁場を作り出さない（もしくは発生しても小さい）ため高集積化が可能であるという特長を持っている。これを実現させるには、反強磁性相でのスピン量子化軸を制御すること、また反強磁性ドメインのサイズや形状を理解・制御する必要がある。しかしながら、そもそもこの反強磁性ドメインを直接観察する手法が非常に少ないのが現状である。そこで本研究では、まずレーザーを励起光源とする新たな光電子顕微鏡システムの開発を行い、反強磁性ドメインの直接観察を試みた。次に本研究では、これを利用して、反強磁性メモリの材料として最も期待されている FeRh 系薄膜の反強磁性ドメインを直接観測し、そのスピン量子化軸やドメインのサイズ・形状の解明を試みた。特にスピン量子化軸を決定することにより、その制御方法を探った。光電子顕微鏡は物質に光を入射し際に光電効果によって飛び出した光電子を電子レンズで拡大結像することによって物質の磁氣的・化学的性質を微視的に観察することができる手法である。従来の光電子顕微鏡は主として放射光を励起光源に用いられているが、巨大な光源の利用という実験上の制約から入射方向が固定されていたため、スピンの方位決定に必要な光の入射方向の切替えが困難であった。本研究では放射光源の代わりにレーザーを光源とすることで、操作性の高さ（光学素子を用いた集光や偏光特性の制御）を駆使し

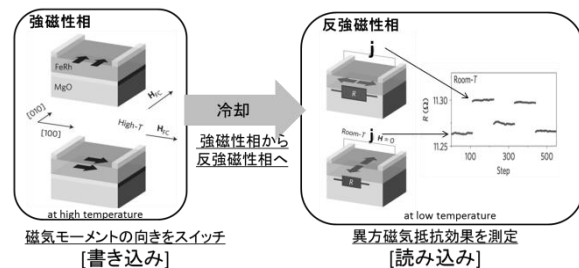


図1 反強磁性体メモリでの書き込みと読み込みの概略図。高温で強磁性相、低温で反強磁性相であるものを材料として使う。**書き込み**⇒高温の強磁性相において、[010]もしくは[100]の結晶方位に磁場を印加し、磁気モーメントの向きそれぞれの方向に揃える。黒い矢印は磁気モーメントの向きを表している。その後、反強磁性相へ転移させるために冷却する。**読み込み**⇒低温における反強磁性スピン軸は高温時に印加した磁場の方向に依存する。読み込みのために[100]方向、に電流をかけ抵抗を測る。右にあるグラフはその抵抗値であり、高温時に印加した磁場の方向と電流の向きが平行の場合、抵抗値が小さく、垂直場合は高い。

て初めて反強磁性ドメインの直接観測を試みた。反強磁性ドメイン観測のため使われる手法は、従来、X線を光源とした光電子顕微鏡装置と磁気線二色性を用いた観測手法を合わせたものである[2][3]。FeRh薄膜のスピ量子化軸は面内方向にしていることが予想されているが、これを正確に決定するには光を垂直に入射する必要があった。そこで本研究ではレーザーを使って面直入射による測定系を構築した。

【実験方法】

本研究で用いたレーザー光電子顕微鏡装置は、エネルギー分析器及び収差補正機構付きの SPELEEM (Elmitec, GmbH) を用いた。本装置には静電ミラー技術が利用されており、電子レンズを通過した光電子が静電ミラーで反射されることで、色収差と球面収差を低減し極めて高い空間分解能を得ることが可能である。使用したレーザーは、波長 266nm、強度 2W、光子の数（通常使われている放射光光源の 100,000 倍以上の） 2.6×10^{18} photos / s である。その結果、測定時間を短くできるため、装置の振動やサンプルのドリフトの影響を小さくすることができ、より高分解能の測定が可能である。それらの結果、本研究で使用するレーザー光電子顕微鏡は、世界最高 3nm の空間分解能を有している（図 2）。

測定した試料は、MgO 基板上に分子線エピタキシー法で成長させた FeRh 薄膜および Cu ドープされた FeRh 薄膜である。FeRh 薄膜において反強磁性から強磁性に転移し始める転移温度は 310K 付近である。Cu を添加することにより転移温度を操作できることが知られている。本研究では面直入射可能な光電子顕微鏡装置と偏光をスイッチすることができる測定系を開発し、FeRh 薄膜と Cu ドープ FeRh における反強磁性ドメインの観測を試みた。

【結果・考察】

図 3 は価電子励起の磁気線二色性を用いた室温付近(反強磁性相)での FeRh 薄膜の観測結果である。FeRh 薄膜に対して面直に (c 軸方向に) 直線偏光を入射した。図 3(a)は結晶の a 軸に対して平行な偏光を入射した像と b 軸に対して平行な偏光を入射した像との差分像である。その結果、反強磁性のスピ量子化軸に起因するコントラスト (反強磁性ドメイン) を得ることに成功した。

a 軸に対して平行な偏光を入射した像と b 軸に対して平行な偏光を入射した像との差の起源として二つの可能性を考えている。1つは、良く知られている、結晶場の歪みと偏光方向の関係によるものである。電



図 2 本研究で用いた収差補正機構付き光電子顕微鏡による Pb/Mo(100)アイランド構造 (視野: 650nm)。空間分解能は約 3nm を達成。

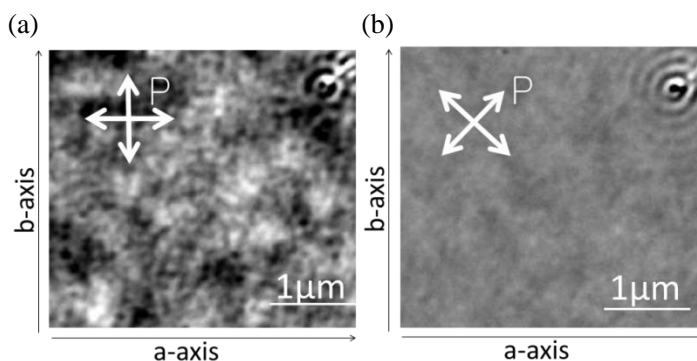


図 3 室温付近(294K、反強磁性相)で FeRh 薄膜に対して面直に (c 軸方向に) 直線偏光を入射した PEEM 像。(a)は a 軸に対して平行な偏光を入射した像と b 軸に対して平行な偏光を入射した像との差分像である。赤いエリアと青いエリアは反強磁性ドメインであり、それらは互いに直交するスピ (かつ偏光方向に平行な成分があるスピ) を持っている。(b)は偏光を c 軸に対して 45° 回転させた時の差分像である。

子の波動関数と光の相互作用があるため、歪みの影響を受けた波動関数は偏光方向に依存して吸収強度が変わる。その結果、差分像においてコントラストが出る。光電子顕微鏡における NiO の T ドメイン（反強磁性歪みの情報を持ったドメイン）の観測[5][6]やシリコンダイマーにおける(2×1)、(1×2)ドメインの観測[7]も、結晶場の歪みを電場で観測した例である。

もう一つは、光とスピンの相互作用によって光電子強度が変化し得る可能性である。それは双極子選択律より説明できる。物質に光を入射したとき、電子系の光の放出、吸収はフェルミの黄金律で記述でき、結晶が歪んでいる場合や、磁気モーメントの向きに規則性がある場合、偏光の方向によって光放出の量が変わると考えられる。図 3(a)はその偏光の向きが異なる 2 枚の像における光電子量の違い（非対称度）を表しており、黒いエリアと白いエリアは反強磁性ドメインであり、それらは互いに直交するスピン（かつ偏光方向に平行な成分があるスピン）を示している。以上の実験結果から反強磁性ドメインのサイズについても分かり、これらの数百 nm 程度であった。また、この差分像におけるコントラストの非対称度は 0.85%であった。一方、図 3(b)は偏光を c 軸に対して 45° 回転させた時の差分像である。この時の非対称度は、図 3(a)に比べて小さく、0.19%であった。以上のように図 3(a)が図 3(b)に比べて非対称度が大きいことから、FeRh 薄膜における反強磁性相のスピン量子化軸は a 軸、b 軸に平行な方向であることが明らかになった。これは強磁性相における量子化軸の方向と一致した[4]。

次に Cu ドープ FeRh 薄膜でも同様に 2 種類の偏光の方位での差分像を取得した。その結果、Cu ドープ試料においては図 3 のような偏光の方位による明瞭な差が観察されないことが分かった。この結果は Cu ドープ試料ではスピン量子化軸の異方性が小さいことを示しており、FeRh 系薄膜においては Cu の添加がスピン量子化軸の制御において重要な役割を持つ可能性がある。本講演ではこれらの違いについても詳細に議論する。

【結論】

反強磁性体メモリの材料として期待される FeRh 薄膜の反強磁性ドメインを観察するために面直入射可能なレーザー励起光電子顕微鏡装置と偏光をスイッチすることができる光学系を開発した。そのレーザー励起光電子顕微鏡を用いて FeRh 薄膜の反強磁性ドメインの観測を行い、FeRh 薄膜における反強磁性ドメインのサイズと反強磁性相の量子化軸の決定に成功した。

【参考文献】

- [1] X. Marti *et al.*, Nat. Mater. **13**, 367-374 (2014).
- [2] A. Scholl *et al.*, Science **287**, 1014(2000).
- [3] J. Stohr *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 1862 (1999).
- [4] C. Baldasseroni *et al.*, Appl. Phys. Lett. **100**, 262401 (2012).
- [5] M. G. A. van Veghel *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **311**, 565 (2007).
- [6] K. Arai *et al.*, Phys. Rev. B, **83**74401 (2012).
- [7] D. Thien *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 196102 (2007).

【学会発表】

1. 学会名：日本物理学会（第 69 回年次大会） 発表月：2014 年 3 月 形式：口頭発表 番号：29pAS-6 題目：「強磁性—反強磁性転移を有する FeRh 薄膜の磁気異方性」
2. 学会名：LEEM/PEEM-9（透過電子顕微鏡（LEEM）・光電子顕微鏡（PEEM）に関する国際学会） 発表月：2014 年 9 月 形式：ポスター発表 番号：P-II-19 題目：「Antiferromagnetic - to - ferromagnetic phase transition and magnetic anisotropy of FeRh thin films」