

論文内容の要旨

Structures and Magnetic Anisotropies in Co Thin Films Studied by Surface XAFS and XMCD

論文題目

（ 表面 XAFS と XMCD による
Co 薄膜の構造と磁気異方性に関する研究 ）

氏名 宮脇 淳

序

薄膜極限で磁化容易軸が面直となる垂直磁気異方性 (PMA) は、古典電磁気学ではエネルギー的に不安定であり、薄膜特有の性質として数多くの研究が行われてきている。磁性体における磁気異方性の起源は、形状磁気異方性、結晶磁気異方性、磁気弾性異方性の三つによって説明されるが、形状磁気異方性は、薄膜では常に面内方向を磁化容易軸とするので、垂直磁気異方性の起源は、結晶磁気異方性、磁気弾性異方性の二つによって説明される。結晶磁気異方性は、スピンの軌道とスピン軌道相互作用を通じて作用した結果生じるもので、主に電子状態に依存する。一方、磁気弾性異方性は、磁性体の自発磁化によって格子が歪むという磁歪の逆効果として生じるものであり、主に構造 (結晶歪み) に依存する。一般に、薄膜は基板上でのエピタキシャル成長によりバルクとは異なる構造をとることが知られており、薄膜における垂直磁気異方性の起源を理解するためには、薄膜の構造を考慮に入れた議論が必須となる。そこで、本研究では、表面 X 線吸収微細構造 (XAFS) と X 線磁気円二色性 (XMCD) を用い、構造と磁気異方性の相関に注目しながら、Pd(111)、Ru(0001) 表面上の Co 薄膜における垂直磁気異方性の発現機構を検討した。

XAFS のうち、吸収端近傍の XANES からは主に吸収原子の電子状態、配位状態がわかり、より高エネルギー側に現れる EXAFS からは吸収原子周辺の局所構造に関する情報を得ることができる。XAFS は吸収スペクトルであるので回折が適用できない系に対しても有効であり、また、偏光依存性を利用することによって面内・面間の構造情報を直接得ることが出来るため、非常に強力な薄膜の構造解析手法となる。XMCD は、磁気異方性を決定する軌道磁気モーメントをスピン磁気モーメントから分離して定量することが出来る数少ない手法で、磁気異方性の研究に非常に適した手法である。

さらに、XAFS、XMCD はともに X 線吸収分光に属し、元素選択性を有するので、目的とする薄膜の情報のみを得ることが可能である。

Co/Pd(111)

Pd(111) 表面上の Co 薄膜は 3.5 層 (ML) 以下で垂直磁気異方性を示すことが知られているが、その構造については成長初期の島状成長のため研究例が少なく、特に歪みの有無については結論が得られていなかった。そこで、この系に表面 XAFS を適用し、界面における歪みの有無に注目して Co 薄膜の構造解析を行った。

実験は KEK-PF BL-7C に超高真空チェンバーを設置し、すべての作業を超高真空下で行った。試料は、清浄化した Pd(111) 単結晶基板に Co を電子衝撃法によって室温で蒸着することにより作製した。測定温度は 120 K で、偏光依存性を活用するため直入射 (90°, NI) と斜入射 (30°, GI) で測定した。図 1 に、各膜厚において得られた Co K-edge EXAFS 関数 $k^2\chi(k)$ のフーリエ変換を示す。FEFF8.2 によって計算した hcp, fcc 構造の Co 薄膜のフーリエ変換も同時に示してある。3.8 Å, 4.8 Å 付近に見られる二つのピークが両入射方向に観測され、XANES の結果とも併せて Co 薄膜が fcc 構造をとっていることがわかった。

より定量的な解析のため、第一配位を逆フーリエ変換し、 k 空間上でフィッティングすることによって解析した。得られた面内・面外の結合距離の値を膜厚に対してプロットしたものを図 2 に示す。面内の結合距離が膜厚の減少とともにわずかに長くなっているが (~0.8%)、1 ML においてもほぼバルクの結合距離と同じであり、Co は Pd(111) 表面上で不整合に成長していることを明らかにした。Co と Pd の格子ミスマッチが ~9.1% と非常に大きいために、整合に至らなかったと考えられる。

以上の結果から、Co/Pd(111) での垂直磁気異方性の発現における構造の要因はごくわずかであり、磁気弾性異方性の寄与は無視できること、したがって垂直磁気異方性の起源は結晶磁気異方性に求められるべきであることを明らかにした。

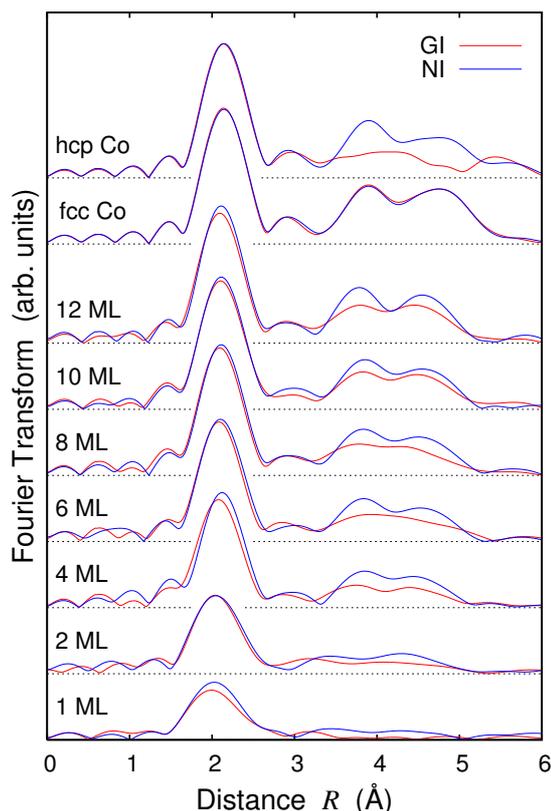


図 1: Co/Pd(111) の各膜厚における Co K-edge EXAFS 関数 $k^2\chi(k)$ のフーリエ変換

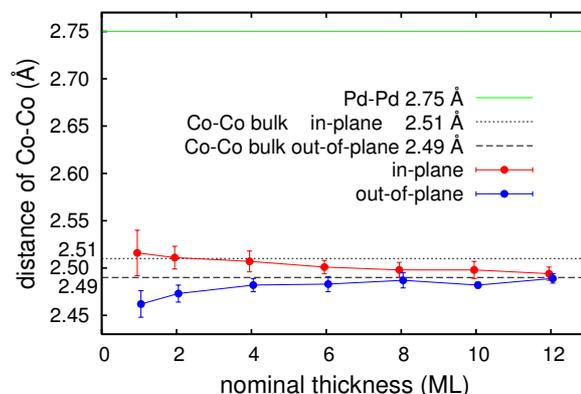


図 2: Co/Pd(111) の各膜厚における面内・面外方向の Co-Co 結合距離

Co/Ru(0001) 及び Ru/Co/Ru(0001)

Co/Ru 系は、多層膜において強い層間相互作用を示すことから数多くの研究が行われてきているが、その垂直磁気異方性の起源についてはいまだに解明されていない。そこで、Co/Ru(0001) の構造と磁気異方性、及び Ru 被覆による両者の変化を表面 XAFS、XMCD によって調べ、構造の観点から Ru/Co/Ru(0001) における垂直磁気異方性の起源を探った。

Co *K*-edge XAFS の測定は KEK-PF の BL-7C において、Co *L*_{III,II}-edge XMCD の測定は BL-7A において行った。両実験とも試料作製も含めて全て超高真空中で行った。試料は、清浄化した Ru(0001) 単結晶基板に電子衝撃法によって、基板温度 90°C で Co、Ru を蒸着することより作製した。両実験とも、測定温度は 120 K、偏光依存性を活用するため、直入射 (90°) と斜入射 (30°) で測定した。

図 3 に、Co/Ru(0001) の各膜厚で得られた Co *K*-edge EXAFS 関数 $k^2\chi(k)$ のフーリエ変換を示す。第一配位の解析より得られた Co-Co の結合距離の膜厚に対する変化を図 4 に示す。1 ML の試料で、Co の面内方向の結合距離 (2.663 Å) がバルクの Co の結合距離 (2.49–2.51 Å) よりもずっと大きく、バルクの Ru の結合距離 (2.70 Å) とほぼ等しくなっており、Co 薄膜が Ru 基板に整合した結果、非常に大きな歪みが導入されていることがわかる。

この歪みは膜厚の増加とともにすぐに緩和し、6 ML 以上では面内・面外の結合距離に変化はなくなる。ここで得られた Co-Co の結合距離は膜全体の平均値であるので、5, 6 ML の Co 薄膜の表面は完全に緩和していると推察され、これらの構造の結果は過去の RHEED の結果と一致した。

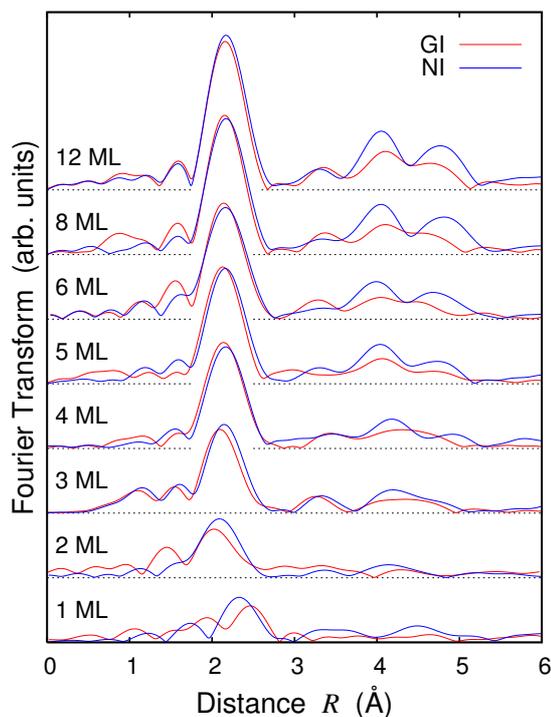


図 3: Co/Ru(0001) の各膜厚における Co *K*-edge EXAFS 関数 $k^2\chi(k)$ のフーリエ変換

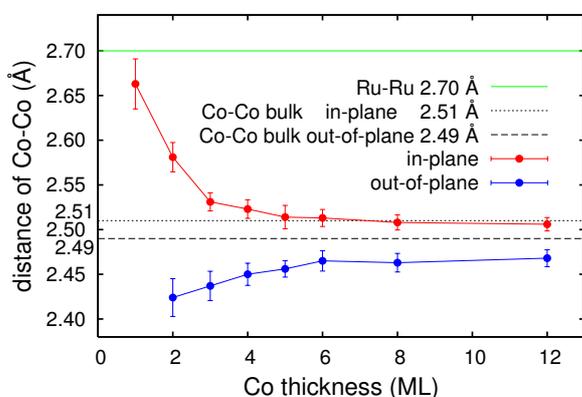


図 4: Co/Ru(0001) の面内・面外方向の Co-Co 結合距離の膜厚に対する変化

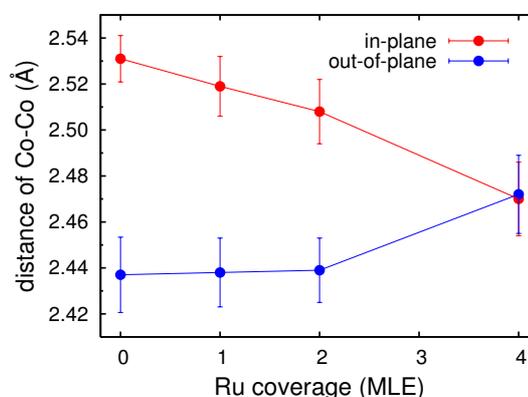


図 5: 3 ML Co/Ru(0001) の面内・面外方向の Co-Co 結合距離の Ru 被覆量に対する変化

図 5 に 3 ML の Co/Ru(0001) に Ru を被覆していったときの第一配位の Co-Co の結合距離の変化を示す。Ru 被覆前にあった歪みが、4 ML 相当 (MLE) の Ru 被覆で完全に緩和することがわかる。同様の緩和が 2 ML の試料でも確認されたが、6 ML の Co 薄膜では確認されなかった。6 ML の Co 薄膜では、表面の Co が歪みを有していないので緩和が起きなかったと考えられ、Ru 被覆は Co 薄膜中の歪みを緩和させることを明らかにした。

磁性に関しては、XMCD の測定から、Ru 被覆前の Co 薄膜は測定した全膜厚 (1–15 ML) において面内磁化しか示さないが、Ru 被覆後は面直磁化を示すものがあることを確認した。Ru 被覆後の Co 薄膜の XMCD スペクトルから得られた面内・面直磁化の割合を図 6(a) に示す。2–6 ML の Co 薄膜では Ru 被覆によって面内から面直磁化へのスピン再配列転移 (SRT) が起き、9 ML 以上では Ru 被覆後も面内磁化のままであった。Ru 被覆した 7, 8 ML の Co 薄膜は面内・面直磁化の両方を示した。

XMCD に磁気総和則を適用することによって得たスピン・軌道磁気モーメント (m_s, m_l) から求めた、各スピンあたりの軌道磁気モーメント (m_l/m_s) の変化を図 6(b) に示す。9 ML 以上の Co 薄膜において、面内方向の軌道磁気モーメントが Ru 被覆によって減少することが観測された (図中の矢印)。これらの膜厚の Co 薄膜は、被覆前の Co 表面に歪みがなく (図 4)、一方で、Ru 被覆は Co 薄膜の歪みを緩和させる方向に働くので (図 5)、Ru 被覆による構造変化は起こらない。従って、この面内の軌道磁気モーメントの減少は、新たに生じた Co/Ru 界面の寄与に帰属される。スピン再配列転移の観察された 5, 6 ML の Co 薄膜でも表面に歪みがなく構造変化が起こらないので、この面内の軌道磁気モーメントの減少が垂直磁気異方性の起源であると推察される。2, 3 ML の Co 薄膜では Ru 被覆前に大きな歪みを有するので、単純に同様の議論は適用できない。しかし、2, 3 ML の Co 薄膜の歪みは Ru 被覆によって緩和するので Ru/Co 界面の Co は緩和しており、結果的に 9 ML 以上の膜厚の時と同様に面内の軌道磁気モーメントが減少し、垂直磁気異方性が発現したと考えられる。

以上から、垂直磁気異方性の起源は、Ru と歪みのない Co の界面における面内の軌道磁気モーメントの減少であり、2, 3 ML の Co 薄膜で垂直磁気異方性が観測されたのには Ru 被覆による Co 薄膜の歪みの緩和が重要な役割を果たしていることを明らかにした。

結論

構造に関して結論の出ていなかった Co/Pd(111)、Ru/Co/Ru(0001) の二つの系に表面 XAFS を適用して構造解析を行い、XMCD の結果と併せて、垂直磁気異方性の発現と構造の相関を明らかにした。

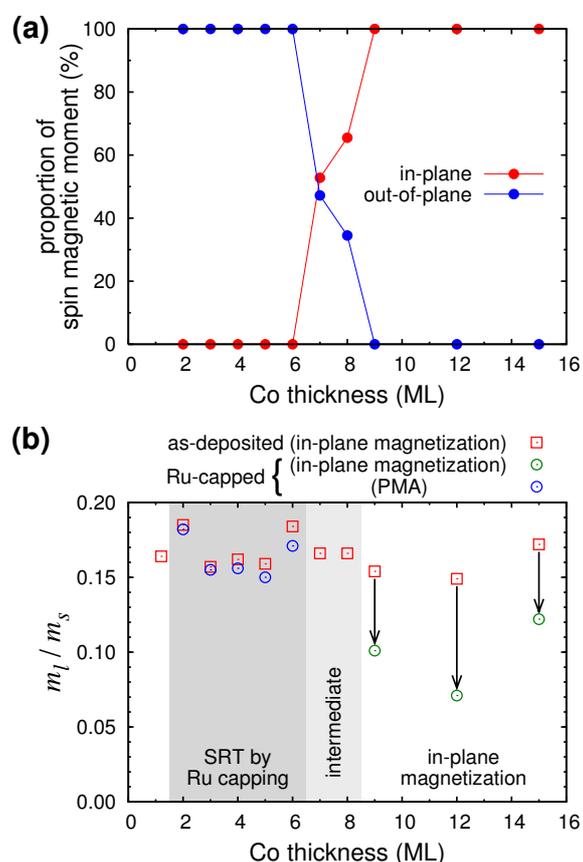


図 6: (a) Ru/Co/Ru(0001) における面内・面直磁化の割合の Co 膜厚に対する変化、(b) 各膜厚における Co 薄膜のスピン・軌道磁気モーメントの比の Ru 被覆による変化