

共鳴 X 線磁気散乱法による TM/FeGd/TM 膜

(TM=Fe,Co)の磁気構造

児玉謙司^a, 細糸信好^b, 早崎有一^a, 大河内拓雄^c, 石橋晃一^a, 小池崇^a

^a奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科

^b奈良先端科学技術大学院大学・物質科学教育研究センター

^c京都大学・化学研究所

目的、背景

2005A では共鳴磁気散乱強度の磁場依存性を測定することで、Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd モーメントに着目した元素選択ヒステリシスの測定に成功した。X 線の進行方向と外部磁場方向のなす角を 0、90 度と 2 種類の配置で実験を行い、Gd モーメントをベクトル量として測定した。その結果 Gd モーメントは FeGd 層内で深さ方向に捩れた構造をとることはなく、ほぼ一様に回転していることが明らかになった。FeGd 合金層は、Fe と Gd 原子の磁気モーメントが互いに反平行に配列するフェリ磁性体である。そのため Fe モーメントに着目した場合、Gd モーメントに対して 180 度ずれて回転することが予想される。しかし、合金層は上下を Fe 層で挟まれているため Fe に注目した場合、合金層の Fe と上下の層の Fe を分離して測定することは困難である。そこで我々は上下の Fe 層を Co 原子に置き換えた Co/FeGd/Co 三層膜を作製し、元素選択的にそれぞれの元素について磁気ヒステリシスを測定することによって上下の磁性層と合金層の磁気モーメントの挙動について明らかにする事を目的に実験を行った。

試料

・Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å] / Si(111)

・Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å] / Si(111)

の二つの三層膜を真空蒸着によって作製した。上下の Fe、Co 層の成長レートは 0.18 Å/s である。FeGd 合金層は同時蒸着により作製した。組成比

は Fe₆₀ Gd₄₀atom% に設定した。Gd レート: 0.34 Å/s、Fe レート: Gd レート×0.53 となるように制御して目的とする組成を得た。ベース真空度は 7×10^{-11} torr、成長中の真空度は 1.0×10^{-10} torr であった。

図 1 に VSM (振動試料型磁力計) で測定した磁化曲線を示す。

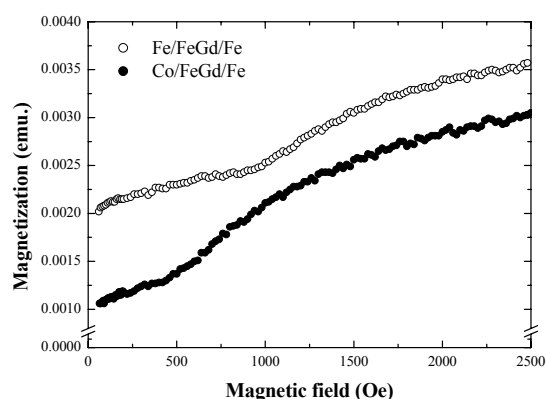


図 1 磁化曲線

磁場は試料面内に印加している。Fe/FeGd/Fe では 1000Oe 付近、Co/FeGd/Co では 500Oe 付近で磁化曲線に折れ曲がりが見られる。この点 (H_{sp} とする) を境に磁場を強く印加すると、徐々に磁化は増加していく。この現象について、次のように説明できる。

三層膜の FeGd 合金層は上下 Fe、Co 層と Gd 原子の磁気モーメントが互いに反平行に配列するフェリ磁性体である。合金層を適当な組成比に設定すると Gd 原子の磁気モーメントの方向が正味の磁気モーメントの方向に一致する。また、三

層膜の上下層のモーメントと FeGd 層の正味のモーメントは反強磁性結合になり人工フェリ磁性体を形成する。上下層の全磁気モーメントが合金層の全磁気モーメントより大きい場合、試料に弱い外部磁場を印加すると、上下層の磁気モーメントは磁場に平行、合金層の Gd 磁気モーメントは反平行に配列する。印加磁場を強めていくに従って、Gd 原子の磁気モーメントは少しずつ回転し、最終的に磁気モーメントは磁場に対してほぼ平行に配列する。

XMCD 測定 (Co/FeGd/Co 膜)

透過法による XMCD (磁気円二色性) スペクトル測定を行った。エネルギー範囲は Co-K (7720eV)、Fe-K (7112eV)、Gd-L3 (7243eV) 吸収端近傍±50eV とした。ステップは Co、Gd では 1eV、Fe は吸収端でのスペクトル幅が狭いことを考慮して 0.5eV とした。実験配置を図 2 に示す。

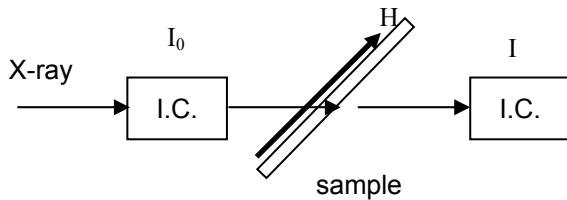


図 2 XMCD 実験配置 BL39XU

試料は X 線に対して 45 度傾け取り付けた。磁場は試料面内方向に電磁石によって印加する。今回の実験では 200、1500、1500 Oe の磁場を印加して実験を行った。これらは $H < H_{sp}$ 、 $H \sim H_{sp}$ 、 $H > H_{sp}$ に対応する。実験結果は次の式を用いて計算している。

$$XMCD = \left[\left(\frac{I^+}{I_0^+} \right) - \left(\frac{I^-}{I_0^-} \right) \right] / 2$$

式中の+、-の添え字は円偏光のヘリシティを表す。

XMCD 測定実験結果

図 3 に XMCD 測定の結果を示す。Co のスペクトルは、どの印加磁場においても一致している。またスペクトルの形、符号から Co のモーメントは磁場方向を向いた強磁性を示すことがわかる。Gd のスペクトルは 200Oe を印加した場合に正、5000Oe の場合は負となっている。このことから Gd は磁場と反平行方向を向いた状態から平行方向にスピントロップを起こすことがわかる。Fe についても同様にスペクトル形状から判断すると Gd モーメントと逆方向となり、平行方向から反平行方向である。この結果は Co/FeGd/Co 三層膜の各モーメントの挙動は Fe/FeGd/Fe 三層膜同様である可能性を示唆している。

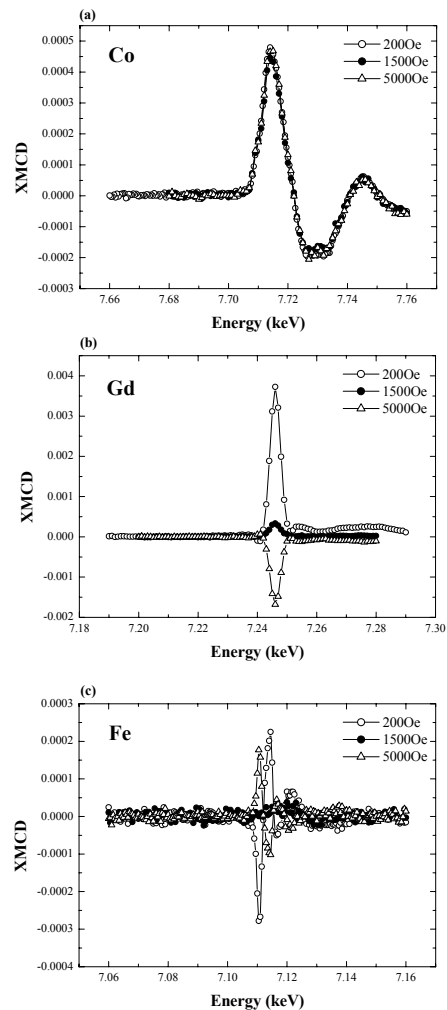


図 3 XMCD スペクトル (Co/FeGd/Co 三層膜)

磁気反射率ヒステリシス測定 (Co/FeGd/Co 膜)

実験配置を図 4 に示す。ω、2θ を鏡面反射配置に固定して磁場を変化させながら±ヘリシティに対応する APD と IC のカウントを測定する。実験をおこなったエネルギーは Co-K (7720eV)、Fe-K (7112eV)、Gd-L₃ (7243eV) である。また角度は各エネルギーに対して同一の波数ベクトル $qz=0.096 \text{ \AA}^{-1}$ となるように角度の調整をおこなった。ただし磁気散乱強度が弱い場合は若干角度を変更している。

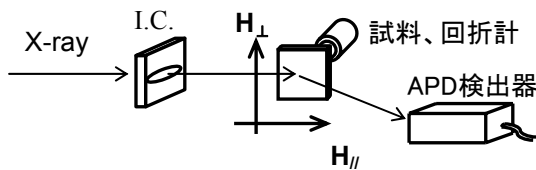


図 4 磁気散乱ヒステリシス実験配置
BL39XU

+ヘリシティに対応する APD カウントを $AP_{//(\perp)}$ 、
-ヘリシティに対応する APD カウントを $AM_{//(\perp)}$ とする。同様に IC に対するカウントを $BP_{//(\perp)}$ 、 $BM_{//(\perp)}$ と定義する。磁場 H に対応する反射率偏極度を以下の式で定義する。

$$P_{//(\perp)}(H) = \frac{AP_{//(\perp)}(H)/BP_{//(\perp)}(H) - AM_{//(\perp)}(H)/BM_{//(\perp)}(H)}{AP_{//(\perp)}(H)/BP_{//(\perp)}(H) + AM_{//(\perp)}(H)/BM_{//(\perp)}(H)}$$

$//(\perp)$ は磁場の印加方向を表す。実験配置から、 $//$ 磁場条件では磁場に平行な磁気モーメントが、 \perp 磁場条件では磁場に垂直な磁気モーメントが磁気散乱に関係する。測定時間は一つの X 線ヘリシティに対して 20s である。磁場の範囲は+1500 Oe~-1500 Oe である。

磁気反射率ヒステリシス実験結果

図 5 にヒステリシス測定の結果を示す。Co の測定では $P_{//}$ の値は 0.001 付近で、 P_{\perp} は 0 付近でほぼ一定値をとる。この結果は Co のモーメントが磁場方向を向いた強磁性であることを支持する結果である。Fe と Gd の測定では (Fe に関して

はノイズではあるが) 磁場を強めていくにしたがい $P_{//}$ の値は減少していく。特に Gd の 500 Oe 付近に折れ曲がり確認できることは VSM の磁化測定の結果と一致している。

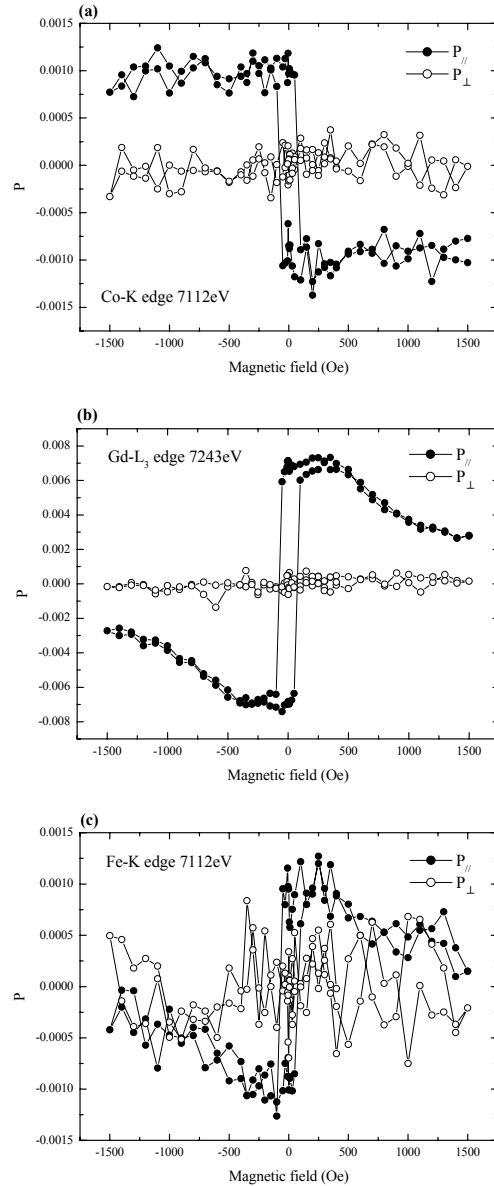


図 5 磁気散乱ヒステリシス
(Co/FeGd/Co 三層膜)

考察 (Fe/FeGd/Fe と Co/FeGd/Fe の比較)

・ Gd の磁気モーメントについて

Fe/FeGd/Fe 膜の磁気反射率ヒステリシス ($E=7243\text{eV}$) を図 6 に示す。図 5 (c) と図 6 の $P_{//}$ を比較すると $y=0$ の軸対称の形になっている。これは実験をおこなった角度で磁気散乱強度の符号が反転していることに起因する。図 7 は磁気散乱シグナルが得られる角度を見つけるためにおこなった Gd- L_3 端での磁気反射率測定である。点線で示す角度で測定をおこなった。(a) は Fe/FeGd/Fe、(b) は Co/FeGd/Co を示す。Fe/FeGd/Fe 膜では 500 Oe、Co/FeGd/Co 膜では 200 Oe を印加しているが両試料とも印加磁場は H_{sp} より小さいので Gd モーメントの向きは磁場と反平行である。図中の破線の角度でヒステリシス測定をおこなっている。このことから Fe/FeGd/Fe 膜と Co/FeGd/Co の $P_{//}$ は $y=0$ の軸対称となっている。

Fe/FeGd/Fe 膜について $P_{//}$ 、 P_{\perp} 両成分とも 900 Oe 付近で明瞭な折れ曲がりが見える。900 Oe より小さい領域では、 $P_{//}$ はほぼ一定であり、 P_{\perp} はほぼ 0 である。これは、FeGd 合金中の Gd 磁化が磁場と colinear であることを示している。磁場を増すと $|P_{//}|$ が減少することから考えると反平行でると考えられる。800 Oe より大きい領域では P_{\perp} 成分が観測され、Gd 磁化が磁場に対して傾いていることを示している。H=1500 Oe では $P_{//}$ は 0 に近くなっており、平均的な Gd 磁化方向は磁場に垂直に近い。このことは、 P_{\perp} の値からも確認できる。これに対して Co/FeGd/Co 膜では $P_{//}$ についての挙動は Fe/FeGd/Fe 膜と似ているが P_{\perp} の値が常に 0 に近い値をとることから Fe/FeGd/Fe 膜と同様に説明することはできない。VSM、XMCD の結果より Gd モーメントが回転していることは明らかであるので、横磁化成分を常に 0 に保った状態で回転するような磁化回転のモデルが妥当である。図 8 に Fe/FeGd/Fe 膜と Co/FeGd/Co 膜の Gd 磁化回転モデルを示す。Fe/FeGd/Fe 膜について $H < H_{sp}$ の領域では Gd 磁化は磁場と反平行であり、 $H \sim H_{sp}$ で回転を始める。その後、磁場を強めていくに従い磁場方向から捩れる。

Co/FeGd/Co 膜に関して、 $H < H_{sp}$ の領域では同様に Gd 磁化は磁場と反平行である。 $H \sim H_{sp}$ で Gd は回転を始めるが、磁場と垂直方向の磁化を打ち消すように回転しなければならない。これは図に示すようにモーメントが分離して回転するモデルが考えられる。このモデルで垂直成分を 0 に保ったまま平行成分が減少することが説明できる。

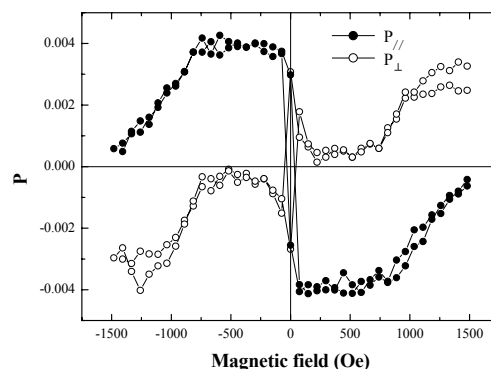


図 6 磁気散乱ヒステリシス (Fe/FeGd/Fe 三層膜)

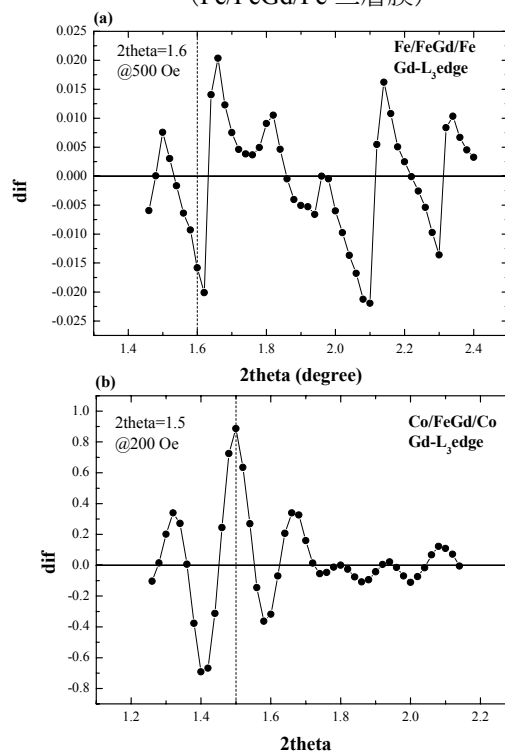


図 6 磁気反射率測定 (a) Fe/FeGd/Fe 膜 (b) Co/FeGd/Co 膜

この結果をより確かなものにするための実験として、直線偏光を用いて磁気反射率ヒステリシ

ス実験を行うことで可能である。直線偏光 X 線をもちいればトータルの横磁化が 0 の場合でも両側に回転した横磁化のそれぞれの絶対値を観測することができるので円偏光で検出できず、直線偏光で検出できれば今回のモデルがより確かになるだろう。もうひとつは印加磁場を $H < H_{sp}$ 、 $H \sim H_{sp}$ 、 $H > H_{sp}$ の条件で磁気反射率測定をおこなうことが挙げられる。磁気反射率プロファイルは深さ方向の磁化分布の情報を与える。磁気構造モデルを仮定しシミュレーションを行うことでより詳細な磁気構造がわかるであろう。

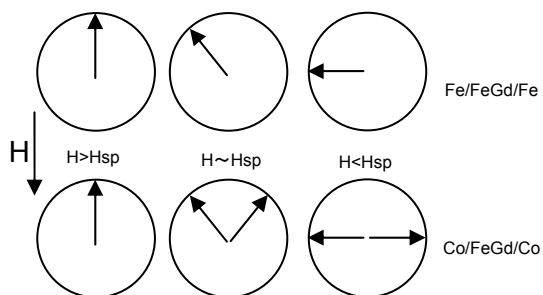


図 8 Gd の磁化回転モデル

・Co、Fe の磁気モーメントについて

図 9 に Co-K、Fe-K 端で測定した磁気反射率測定の結果を示す。測定を行った角度における磁気散乱の符号と Fe、Co のヒステリシスの形は一致している。Co は強磁性で、Fe は Gd 同様に回転していることが予想できる。0 Oe と 1500 Oe 付近の値を比較すると Fe の反射率偏極度は 0.007 から 0.002 に減少する。これは Gd の減少率とおおまかに一致する。このことは FeGd がフェリ磁性であり、結合を保ったまま回転していることを示していると考えられる。しかし Gd のヒステリシスと比較すれば測定精度の差は明らかである。Fe、Co の磁気散乱強度は Gd の強度と比較して約 1/8 である。定量的な議論を行うためには精度を一桁上げるよう測定環境を改良する必要がある。この点は今後の課題である。

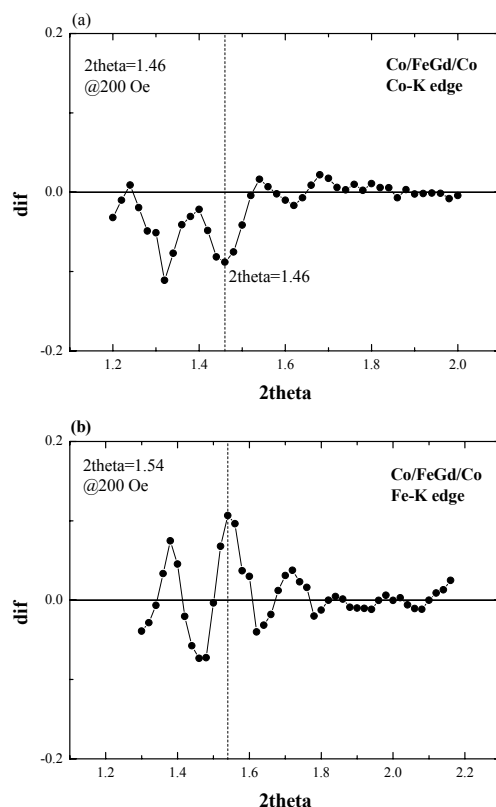


図 9 磁気反射率測定 (Co/FeGd/Co 三層膜)

まとめ

Co/FeGd/Co 三層膜について Co-K、Fe-K、Gd-L₃ 端 X 線を用いて磁気反射率ヒステリシス測定を行った。その結果 Gd、Fe のモーメントは賞味の横磁化を持たずに回転しているモデルで説明することができた。これは Gd、Fe が一方方向に回転する Fe/FeGd/Fe 三層膜と異なる結果である。

VSM 測定では合金層のモーメントが回転していることを予想することが可能である。また XMCD では元素選択的に印加磁場方向に対するモーメントの向き、大きさが分かる。今回行った磁気散乱ヒステリシスは試料面内の捩れに対する知見を与える点で新しい測定法である。今後は測定精度を上げる工夫、磁気反射率測定、直線偏光を用いた実験と組み合わせることでより詳細に基板にある実用素子構造の磁気構造解析が可能になるだろう。

参考文献

2005A 萌芽研究レポート 児玉謙司ら