

広角・小角共鳴 X 線磁気散乱法を用いた

Fe/Au(001)多層膜中の Au 層のスピンの分極分布解析

大河内拓雄^a、壬生攻^b、細糸信好^c、森本泰正^a、児玉謙司^d、石橋晃一^d

^a 京都大学・化学研究所

^b 名古屋工業大学・大学院工学研究科

^c 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

^d 奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科

背景と目的

[磁性/非磁性]金属からなる人工格子は、スペーサーとなる非磁性層を介した磁性層間の間接的な磁気結合や巨大磁気抵抗 (GMR) 効果を示す系として、基礎研究、デバイス応用の両面で魅力ある物質系であり、長年にわたって研究がなされている。非磁性層膜厚の関数としての交換結合定数の振動的な挙動は多くの手法によって理論的、実験的に示されているが、非磁性層に誘起されるスピン分極の大きさの分布に関しては、非磁性層全体からの磁気シグナルを検出し、その膜厚依存性から分布を推測したり、理論から予測されたスピン分極分布の存在を前提として解析を行うことが多く、実空間分布を実験的に調べる直接的な手法がほとんど存在しないのが現状である。

円偏光 X 線を用いた鏡面反射配置における共鳴 X 線磁気散乱法では、左右円偏光の X 線を入射したときの回折強度の差は、電荷構造因子と磁気構造因子の積に比例する。各構造因子は電荷および磁気散乱因子を膜厚方向にそってフーリエ変換した量であるため、差強度データよりスピン分極の実空間分布を元素選択的に推定することが可能である。

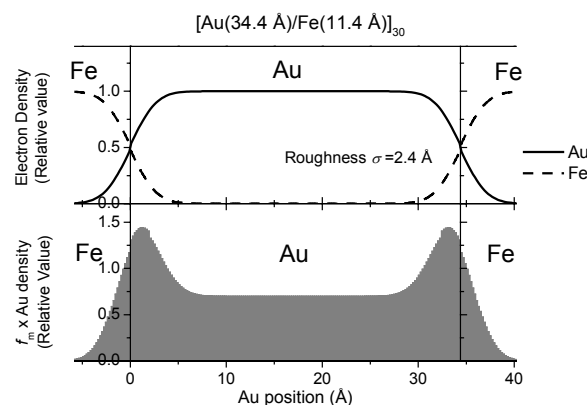


図 1. 小角 X 線磁気散乱によって得られた、Fe/Au 多層膜の Au と Fe の電荷密度分布 (上) と、Au のスピン分極分布 (下)。

我々は、前回の課題申請 (2004B0154-NSc-NP) において小角共鳴 X 線磁気散乱測定を行い、Fe/Au(001)多層膜中の Au 層のスピン分極分布を、界面の乱れを考慮して精密に解析することに成功した (図 1)。Fe 層との界面ではやや大きなスピン分極が誘起されているが、Au 層の内部でも比較的大きな分極が存在し、この膜厚のオーダーではほとんど減衰のない様なスピン分極分布となっている。なお、長周期 (~ 10 Å) の RKKY 振動を持った (正と負の磁気散乱因子を持った) スピン分極分布モデルなども仮定して計算を

行ったが、実験で得られた磁気散乱パターンは定性的にも再現できなかった。しかし、小角領域 ($0\sim 10^\circ$) で見ることのできるフーリエ成分は、せいぜい $5\sim 6 \text{ \AA}$ の周期的変調であり、 k_F ($\sim 1 \text{ ML}$) の周期での振動、変調構造は、もし存在したとしても観測にかからない。

そこで、我々は、上記の X 線磁気散乱法を広角領域 ($20\sim 40^\circ$) まで拡張し、よりミクロなスピン分極の分布を推定することを試みた。

試料

エピタキシャル Fe/Au(001)多層膜は、超高真空蒸着法を用いて作製した。HNO₃でウェットエッチングを施した MgO(001)基板を真空チャンバー内で 350°C で空焼きし、基板温度 200°C で Cr バッファー層を 50 \AA 蒸着した。その後、室温で Ag シード層 500 \AA 、続いて Fe 層と Au 層を 30 回交互に蒸着し、最後に Cr キャップ層を 15 \AA 蒸着した。

作製した試料は界面の平滑性、結晶性ともに良好で、X 線回折測定では、小角、広角領域ともに Fe/Au 超格子周期に由来したブラッグピークが明瞭に観測された (図 4 にて後述)。また、Fe 層間での振動的磁気結合も明瞭で、Au 膜厚に依存して磁気ヒステリシスの形状および GMR 効果の大きさが振動的に変化していることを確認することができた (図 2)。

広角 X 線磁気散乱測定には、設計膜厚 [Fe(12 \AA)/Au(34 \AA)]のものを使用した。

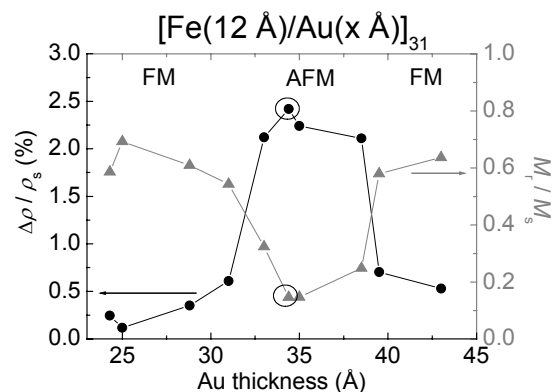


図 2. 磁気ヒステリシス測定での残留磁化/飽和磁化比と GMR 効果の大きさの、Au 膜厚依存性。丸で囲ったものが磁気散乱測定に用いた試料 (Au 膜厚 $\sim 34 \text{ \AA}$)。

実験配置

実験配置は図 3 に示す通りである。ダイヤモンド移相子によって発生する左右円偏光 X 線を用いて回折測定を行った。X 線のエネルギーは、Au L_B 吸収端近傍の 11920 eV とした。Fe/Au の試料はネオマックス永久磁石付きのサンプルホルダーに取り付け、4 軸ゴニオメーターの ϕ 軸上にマウントした。サンプルホルダーに試料を固定した状態で、永久磁石の方向だけを反転させることにより、 $\pm 2000 \text{ Oe}$ の磁場を試料面に平行に印加できる構造になっている。

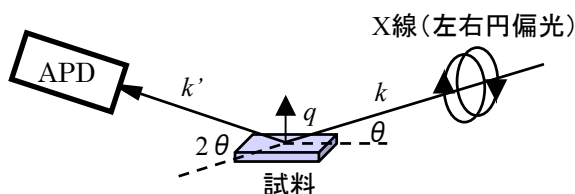


図 3. 実験配置の概略。

ディテクターにはアバランシェ・フォトダイオード (APD) を用いているため、数 100 万 cps 程度の高効率で測定が可能で、電荷ブラッグピークの 0.1~0.01 % 程度の差強度 (磁気散乱) シグナルでも統計性の高いデータを比較的短時間で得ることができる。ディテクターに入る回折強度を調節するためのアッテネーターには Mo 箔を用いた。

Fe/Au 多層膜の広角 X 線磁気散乱データ

Au(002)ピーク周りでの回折プロファイルおよび差強度 (磁気散乱) プロファイルを図 4 に示す。磁気散乱強度は、 $[(I^{++} - I^{+-}) - (I^{+-} - I^{-})]/2$ で定義している。 I の肩の符号は、順に X 線のヘリシティ、磁場の方向を表している (図中では、 $(I^{+} - I^{-})$ と簡略化して書いてある)。また、各ブラッグピーク強度 $(I^{+} + I^{-})_{\text{peak}}$ で規格化してリニアスケールでプロットしてある。

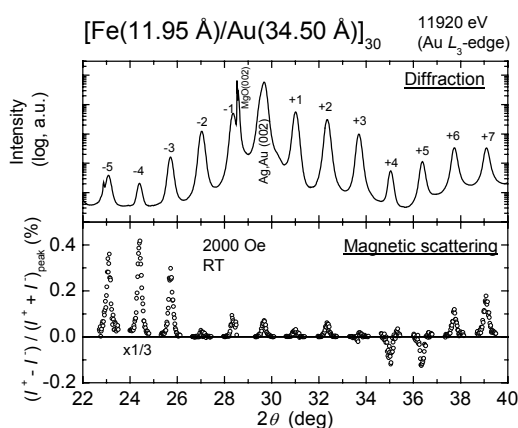


図 4. Fe/Au 多層膜の回折パターン (上) と、磁気散乱パターン (下)。

回折プロファイルでは、超格子周期に由来したサテライトピーク (Au、Ag(002)回折ピークに対して -5~+7 次) が明瞭に観測されており、

高品質の試料が出来ていることが分かる。また、磁気散乱プロファイルも、ブラッグピーク強度の 0.1%~0.3% 程度のシグナルが観測されている。小角領域で観測された磁気散乱 (0.3~0.5% 程度) と比べるとやや小さいが、オーダーとしては同程度である。

電荷構造、磁気構造モデルと解析

解析は、Parrat の理論による小角 X 線反射率のシミュレーション法に基づいて、回折および磁気散乱プロファイルを再現した。

構造 (電荷散乱因子の分布) モデルと回折強度プロファイルの計算データを図 5 に示す。構造パラメーターは以下の通りである。

- Au 膜厚 $34.50 \pm 0.15 \text{ \AA}$
- Fe 膜厚 $11.95 \pm 0.05 \text{ \AA}$
- rms ラフネス 2.2 \AA
- 電荷散乱因子の振幅 (相対値) 1 ± 0.2

膜厚のゆらぎは各層でランダムに与えた。また、原子層単位での電荷密度の振幅は、最も単純なサイン波を想定した。

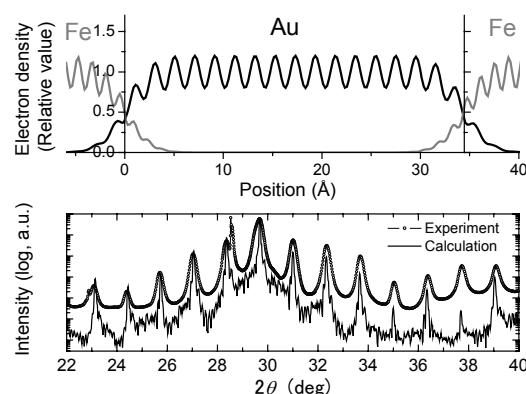


図 5. 仮定した Fe/Au 多層膜の電荷密度分布 (上) と、回折強度パターンの実験値と計算値 (下)。

計算結果は、ブラッグピークの位置とピーク

の強度をある程度再現しているが、バックグラウンド強度及びピークの線幅の一致が良くない。本来、小角反射率の計算に用いるこのシミュレーション法では、磁気構造の実空間分布を直接与え、磁気散乱パターンの計算に応用できる点では便利がよいが、電荷分布を決定する際に原子形状因子、膜厚のゆらぎ、結晶のひずみやデバイ-ワラー因子等の効果を実空間で表現しなければならぬため、構造モデルの精密さには限界が生じている。

このような構造モデルに基づいて、2つの磁気構造を仮定して磁気散乱パターンのシミュレーションを行った。1つは、スピン分極が、電荷密度の変調と同期して1 MLの単位で変調しているモデルである。スピン分極分布と磁気散乱パターンを図6に示す。

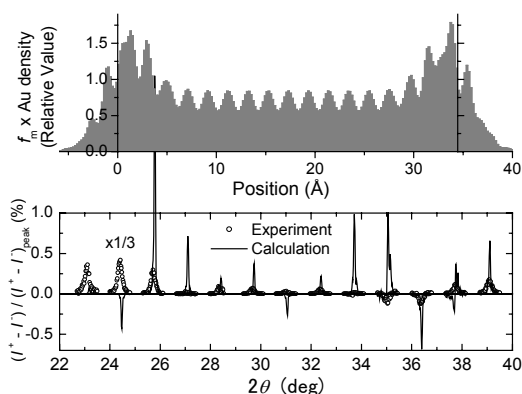


図6. Au層内のスピン分極分布モデル(上)と、磁気散乱パターンの実験値と計算値(下)。

全体的に、磁気散乱ピークの大きさが実験値の数倍になっており、かつピークの符号が4、5つのピークごとに正負に反転しており、定性的に見ても一致はあまりよくない。

次に、スピン分極が原子層単位では変調していないモデルを仮定した(図7)。この分布は、

小角 X 線磁気散乱パターンのフィッティングの際に仮定したものと同様である。ピーク強度の大きさは、先ほどのモデルと比べて実験結果を概ね良く再現している。 $-5 \sim -4$ 次、 $+4 \sim +7$ 次の辺りで一致が良くないが、この角度範囲での回折パターン、特にブラッグピーク強度の再現性が良くない(図5)ことが原因である可能性が高い。

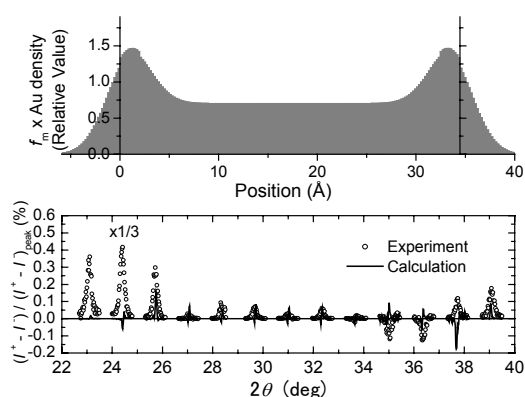


図7. Au層内のスピン分極分布モデル(上)と、磁気散乱パターンの実験値と計算値(下)。

以上の結果より、Au層のスピン分極分布は、1原子層レベルでの変調・振動構造は見られないか、存在するとしても、電荷密度の振幅に比べて非常に弱いものである可能性が高いと考えられる。

まとめ

従来我々が試みてきた、小角回折ジオメトリでの共鳴 X 線磁気散乱法を広角領域まで拡張し、Au L_3 吸収端の円偏光 X 線を用いて Fe/Au(001)多層膜の Au(002)回折ピーク周りの超格子サテライトピークの共鳴磁気散乱パターンを収集することに成功した。実空間での簡単な電荷密度分布モデルを立てて、いくつか

の磁気構造に対してシミュレーションを行ったところ、スピン分極分布は、電荷密度の変調に比べて比較的フラットな変調構造をしていることが示唆された。

ただし、スピン分極分布の変調構造は、単純に電荷密度の変調に同期しているとは限らず、例えば k_F の周期での（フリーデル振動のような）変調構造なども想定されるので、より多くの磁気構造を仮定して多角的に検証する必要がある。また、今回用いた、サイン波的な電荷散乱因子の変調構造は、実際の原子中の電荷分布（原子形状因子）を考えると適切なモデルであるとは言い難い。特に、Au 原子では、異常分散による電荷分布の変化を考慮に入れる必要が生じる可能性もあり、その場合、モデルはさらに複雑になってくる。円偏光 X 線での磁気散乱パターンは、電荷構造因子も含まれているため、原子形状因子等を考慮した、よりリアルな電荷分布モデルを立ててから磁気散乱の解析を行う必要があり、計算プログラムの改良を含め、解析方法の改善を検討している。