

共鳴 X 線磁気散乱法による Fe/FeGd/Fe 膜の磁気構造

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

^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

背景と目的

現在広く磁気デバイスに利用されている磁性ナノ薄膜は、スピンバルブ膜に代表されるような少ない積層構造になっている。それらの磁性評価方法として、表面については LEEM、PEEM による観察が最近の論文で示されている。しかし、内部に埋もれた層の磁気構造を評価することは困難である。

近年、元素選択的に磁性を調べる手法として硬 X 線を用いた X 線磁気円二色性 (XMCD) が良く用いられる。実験の際に下地としてポリイミドを使うことが多いが、実用素子は Si 等の基板上に作られており、透過法による測定は難しい。もう一つの実験方法として共鳴 X 線磁気回折 (RXMD) がある。しかし数層の積層構造からなる磁性薄膜は磁気ブラッグ反射を生じないため、従来の手法では磁気測定を行うことはできない。

そこで本研究では、Si 基板上の Fe/FeGd/Fe 三層膜を対象に埋もれた層の磁気情報の測定法を開発する事を目的とし、大きく分けて2つの実験を行った。一つ目は、二次元 CCD 検出器を用いた共鳴 X 線磁気散乱測定である。数層膜では逆空間における強度分布が比較的小さいことを利用して CCD 検出器によって磁気散漫散乱のマッピングを行った。二つ目は微小角領域の強い磁気シグナルを利用した測定である。微小角領域において散乱配置での磁気ヒステリシス測定を行った。

試料

Fe/FeGd/Fe 三層膜の 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。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 Fe 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。Fe 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、Fe 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。このように Fe 層と FeGd 層の磁化配置は外部磁場によって aligned、twisted、ferro と変化する。

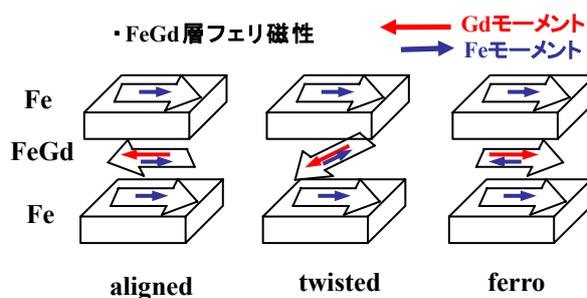


図1 Fe/FeGd/Fe 三層膜の磁化過程

試料は Si (111) 基板上に真空蒸着によって作製した。上下の Fe 層は 14 nm である。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。膜厚は 30 nm、組成比は Fe₆₀Gd₄₀atom% 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 9.8 ×

10⁻¹¹ torr、成長中の真空度は：3.0×10⁻¹⁰ torrであった。

図2に振動試料型磁力計（VSM）で測定したヒステリシス曲線を示す。磁場は面内に印加している。940Oe付近に折れ曲がり確認できる。以降、緩やかに磁化は増加し、3500 Oe付近で飽和に達する。aligned、twisted、ferroと変化する様子が分かる。

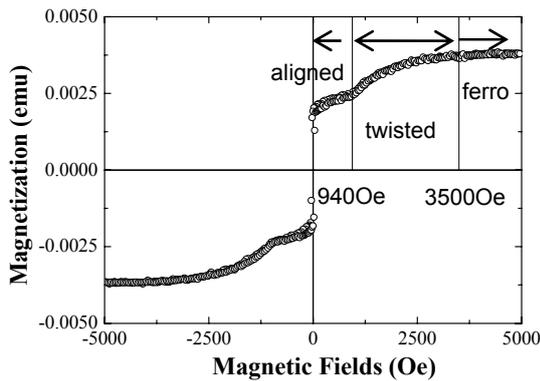


図2 VSMによって測定したFe/FeGd/F三層膜のヒステリシス曲線

CCD 検出器を用いた磁気散漫散乱測定

Gd 原子の磁気モーメントの振れによって生じる3つの磁気構造のうち、aligned、twistedの2つの状態について磁気散漫散乱のマッピングを比較するために CCD 検出器を用いた GdL₃ 吸収端 (E=7.243 keV) 共鳴 X 線磁気散乱実験を行った。測定の模式図を図3に示す。図のような配置の場合 CCD の受光面に応じて A-B の範囲のエバルト球が切り取られる。矢印方向に試料を回転させ露光を繰り返すことで散漫散乱マップが測定できる。

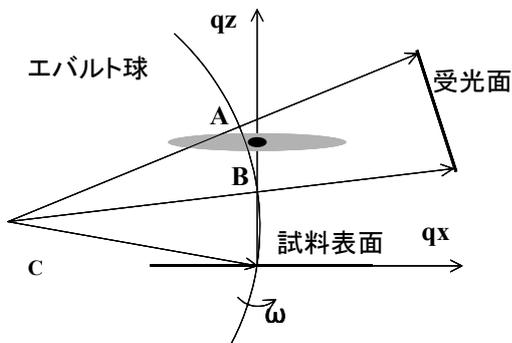


図3 CCD 検出器を用いた散乱測定

実験配置を図4に示す。測定には円偏光を用い、試料面内に磁場を印加する。±500 Oe (aligned)、±1500 Oe (twisted) で測定を行った。ωは 0~1.4° の区間において 0.04° 刻みで変化させて散乱強度測定を繰り返した。露光時間 10 秒、1つのωあたり5回測定を行った。

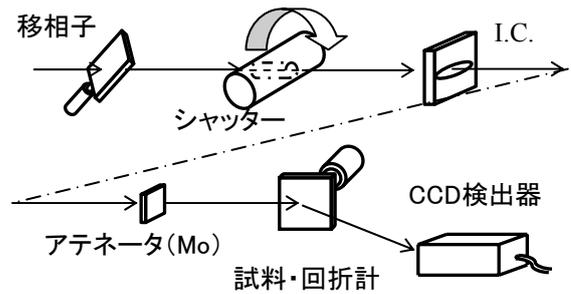


図4 実験配置

得られたデータから散乱データが確認できるピクセル領域を切り出し、露光回数分足し合わせ、モニター強度での規格化、強度補正を行う。その後異なるωのデータをつなぎ、マッピングを行う。

円偏光の±ヘリシティ(右円偏光を+と定義)、±磁場(X 線進行方向と同じ向きを+と定義)の組み合わせから4パターンの電荷散乱強度マップが得られる。一例として印加磁場 500 Oe における+ヘリシティー、+磁場の電荷散漫散乱強度マップを図5に示す。図からスペキュラーラインが確認できる。また微小角領域に特徴的な構造を表すであろう散乱領域がある。このような散乱が逆空間のどこに現れるかを予想するのは困難であり、一次元的なスキャンの繰り返し測定では現実的な時間で発見することは難しい。CCD 検出器により広範囲のマッピングを行い、特徴的な場所を APD などの検出器を用いて精密に測定するなどの利用方法を行うことで効率の良い散漫散乱実験を行うことが可能である。

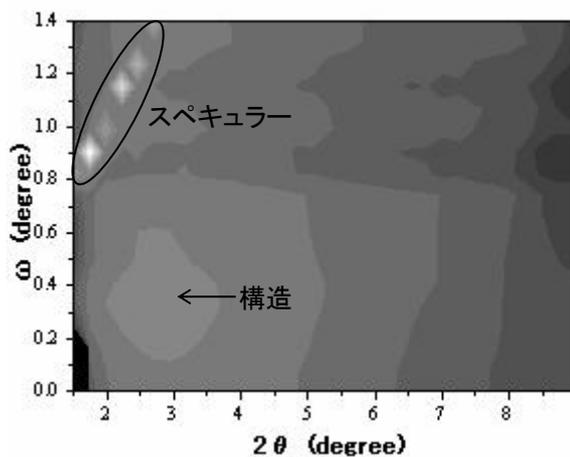


図 5 電荷散乱マップ (+ヘリシティ、+磁場@+500Oe)

図 6 に磁気散漫散乱強度マップを示す。(a)～(d) はそれぞれ+500、-500、+1500、-1500 Oe を印加した場合において+ヘリシティから-ヘリシティの強度を引いたマップである。マップの領域は $\omega = 1.2 \sim 1.4^\circ$ 、 $2\theta = 2.4 \sim 2.8^\circ$ である。各図の左下から右上の方向にある模様はスペキュラー反射の強度差に相当する。

(a)、(b) の図中に示す 1 と 1' 付近の散乱はほぼ同じ位置に存在するが強度差を比較した場合に符号が反転している。2 と 2'、3 と 3' を比較した場合、また (c)、(d) を比較した場合でも同様に符号の反転が見られる。

(a) と (c)、(b) と (d) を比較した場合スペキュラーに沿った強度振幅の様子が異なっている。これは印加磁場に応じて生じる磁気構造の変化を表す。ここで示した他に磁気散乱シグナルが検出できる領域もある。

図 5 に示すような広範囲の領域の磁気散乱を精度よくマッピングするにはアテネータの厚さに応じた強度補正をより正確に行う必要がある。しかし磁気散漫散乱シグナルは非常に弱いため、理想的にはアテネータ無しで測定するほうが好ましい。つまりスペキュラー反射を隠しながら測定を行えば空間全域を同じ条件にしてデータ処理が行える。今回の実験は 2θ 固定 (検出器固定) で行ったが、常に $2\theta = 2\omega$ となるように検出器を

移動すれば、スペキュラー部分をカットしながらその他の領域の測定が可能になる。

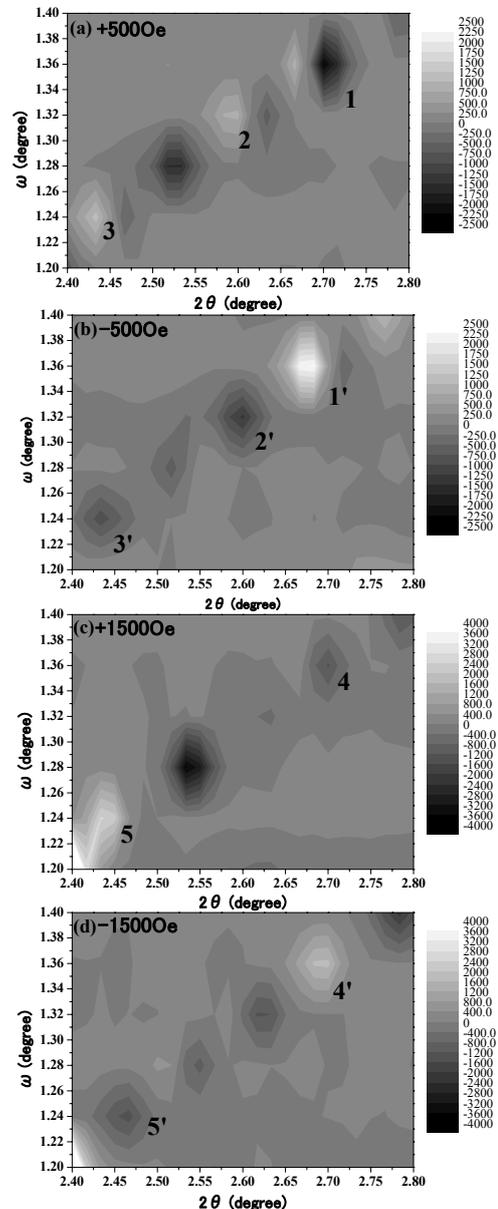


図 6 磁気散漫散乱マップ、作図領域： $\omega = 1.2 \sim 2.4^\circ$ 、 $2\theta = 2.4 \sim 4.8^\circ$ (a) : +500 Oe、(b) : -500 Oe、(c) : +1500 Oe、(d) : -1500 Oe

磁気反射率ヒステリシス測定

図7に示すように、 $\omega=0.8^\circ$ 、 $2\theta=1.6^\circ$ に固定して、磁場を変化させながら \pm helicity に対応する APD と IC のカウントを測定する。

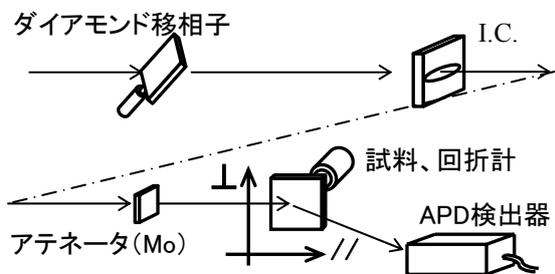


図7 実験配置

+ヘリシティに対応する APD カウントを AP 、-ヘリシティに対応する APD カウントを AM ととする。同様に IC に対するカウントを BP 、 BM 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 Gd 磁気モーメントが、 \perp 磁場条件では磁場に垂直な Gd 磁気モーメントが磁気散乱に関係する。測定に使用した X 線エネルギーは 7243 eV である。また、Mo フィルタなしで APD カウントレートはおよそ 200 万 cps であった。測定時間は一つの X 線ヘリシティに対して 2×30 s である。測定プログラムの制約から、ヘリシティを+-+-と最低2回変化させる必要があったので、30 s の測定を続けて2回行った。磁場を変化させるために磁場電源のポテンシオメータを手作業で変化させた。磁場の範囲は $+1500$ Oe \sim -1500 Oe である。

測定した偏極度 $P_{//(\perp)}$ の結果を図8に示す。データの平均は何らかの偏りのため0にならない。図8下はデータの平均が0になるように偏りを補正した結果である。黒点のプロットは磁場に平

行な Gd 磁化成分 (縦磁化成分)、白点のプロットは磁場に垂直な Gd 磁化成分 (横磁化成分) の磁場変化に対応する。両成分とも $H_{sp} \sim 800$ Oe 付近で明瞭な折れ曲がり観測され、この磁場でスピントロップを起こしていることが分かる。 $|H| < H_{sp}$ の磁場領域では、保磁力以下の磁場領域を除いて $P_{//}$ 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。定量的な解析を行わないと平行か反平行かは決められないが、磁場を増すと $|P_{//}|$ が減少することから考えるとおそらく反平行であろう。 $|H| > H_{sp}$ の領域では 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。Gd 磁化がねじれているかどうかは磁気反射率プロファイルを定量的に解析しないと結論できない。

Reflectivity Hysteresis at $\omega=0.8, 2\theta=1.6$

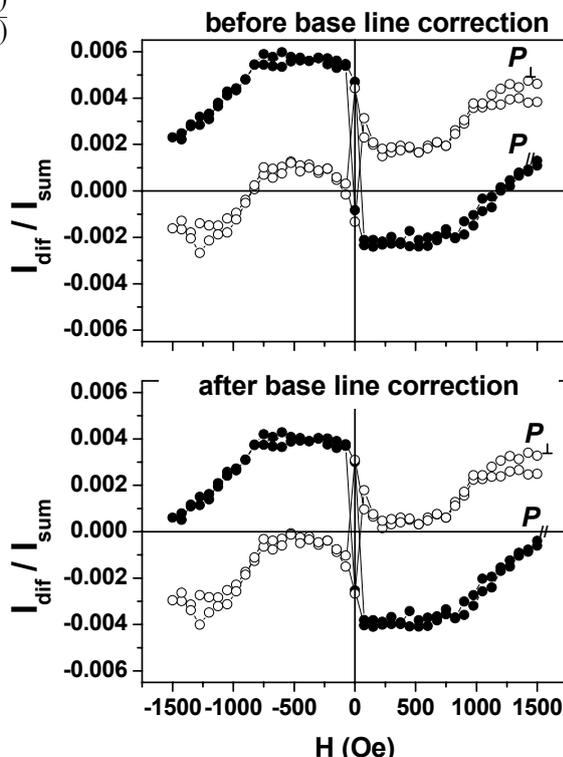


図8 磁気反射率ヒステリシス

Gd 磁化の挙動をベクトル的に見るために x 軸に $P_{//}$ 、y 軸に P_{\perp} をプロットする。結果を図 9 に示す。興味深いことは、縦磁化成分が磁化反転すると、横磁化成分も反転することである。つまり、Gd 磁化反転 (すなわち GdFe 合金磁化の反転) は、 $(M_{//}, M_{\perp}) \rightarrow (-M_{//}, M_{\perp})$ ではなく、 $(M_{//}, M_{\perp}) \rightarrow (-M_{//}, -M_{\perp})$ というように起こっている。なぜ、Gd 磁化ベクトルが右図の第二象限と第四象限にのみ存在するかは不明である。

磁化ベクトルの挙動を詳しく見るため黒三角点に着目する。磁化反転直後は横磁化成分が少し残っているが磁場を増すと横成分は減少し、500 Oe 付近ではほぼ磁場に反平行になる。その後は、やや横磁化成分が現れるが、 H_{sp} 以下の磁場では横磁化成分は大きくない。しかし、磁場が H_{sp} を超えると横磁化成分が急速に大きくなる。図の円は $P=0.004$ の円である。この円周上に沿って Gd 磁化ベクトルが回転すると、Gd 磁化は一樣な回転を行っていることになる。実際には、1500 Oe 付近の P_{\perp} は 0 Oe 付近の $P_{//}$ に比べてやや小さく、Gd 磁化のねじれ、または、不均一な Gd 磁化回転が起きていることを示唆している。

まとめ

CCD 検出器を用いて Fe/FeGd/Fe 三層膜の aligned、twisted 各状態の磁気散漫散乱のマッピングに成功した。測定配置を工夫してより精度の高いデータが得られるようにすることが今後の課題である。2 次的に高精度なデータが得られれば、比較的弱い磁気シグナルを示す 3d 金属の測定にもチャレンジできる。

Fe/GdFe/Fe 三層膜の反射率磁場ヒステリシス測定に成功した。この方法は、通常の XMCD と異なり、基板上の膜でも容易にヒステリシス測定が可能である。また、磁場の方向を X 線ヘリシティに平行、垂直の二つの測定を組み合わせると、注目する元素の磁化をベクトル的に観測できる。ただし、偏極率 P に関係するのは磁気構造因子であり、 P の変化には磁化の大きさの変化と磁気構造の変化の両方の寄与があることに注意する必

要がある。今回は、 $\omega=0.8^\circ$ 、 $2\theta=1.6^\circ$ の条件で測定を行ったが、角度を変えて同様の測定を行えば、磁気構造をより正確に決めることができる可能性がある。

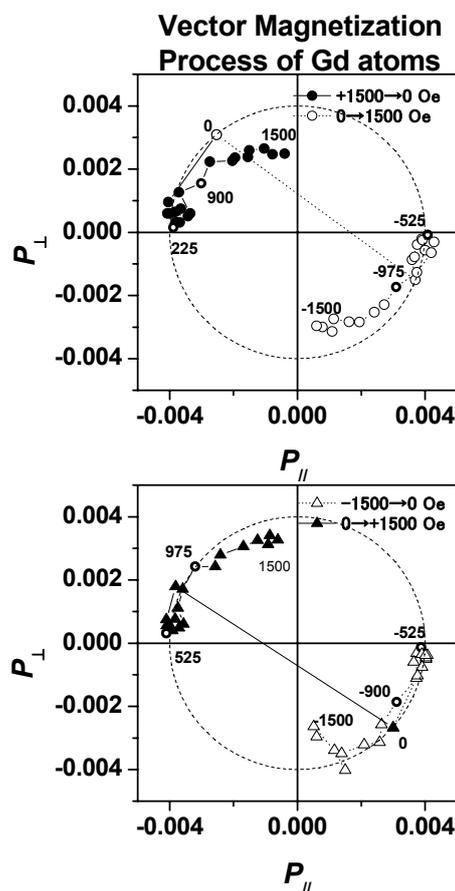


図 9 ベクトル表示