

共鳴 X 線磁気反射率法による CoFe/MnIr 二層膜 における Ir に誘起されたスピン分極

児玉謙司^a, 細糸信好^a, 山岸隆一郎^a, 角田匡清^b, 磯上慎二^b

^a奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科

^b東北大学・工学研究科

背景、目的

薄膜界面で起こる興味深い磁気結合の一つに、強磁性/反強磁性界面の交換バイアス効果が挙げられる。この効果はマクロな磁化曲線の横方向へのシフトとして現れ、一方向磁気異方性ともいわれている。交換バイアス効果は GMR、TMR スピンバルブヘッドのピン止めに利用されており、なかでも CoFe/MnIr 二層膜は大きな交換異方性定数、高いブロック温度を有することから、ハードディスクの高密度化に伴うリードヘッド素子微細化により生じる反磁場や熱揺らぎに耐える実用材料として注目されている。

交換バイアス効果の起源は強磁性/反強磁性界面における反強磁性層内の非補償スピンであると考えられており、それを裏付ける共鳴磁気反射率 (RXMR) 実験による報告[1,2]がある。しかし既往の研究は隣接スピンのコリニア配列する CoO、FeO、NiO を反強磁性層に用いた場合の非補償スピンの深さ分布、元素選択磁化過程について調べた研究に限られ、ノンコリニアスピン配列をとる反強磁性層の非補償成分を対象にした研究はこれまで行われていなかった。

本研究で対象とする MnIr 合金は L12 構造をとり、その Mn スピン配列は triple-Q 構造をとることが知られている (図 1)。非補償成分はその磁気配列の歪みにより発生することが理論計算から期待されていた[3]。共同研究者の角田らは Mn $L_{2,3}$ 吸収端 XMCD によって微小な

Mn スピンの非補償成分が界面数原子層に存在し、磁性層の磁化過程に追従することを見出した[4]。この結果は交換バイアス効果の発現に対する Mn の役割を明らかにする成果である。その一方で非磁性 Ir の電子状態、交換バイアスへの寄与については明らかにされていない。本研究は RXMR によって Ir のスピン分極分布、Ir 元素選択磁化過程を手掛かりとして、交換バイアス効果の発現に及ぼす役割を明らかにすることを目的とした。

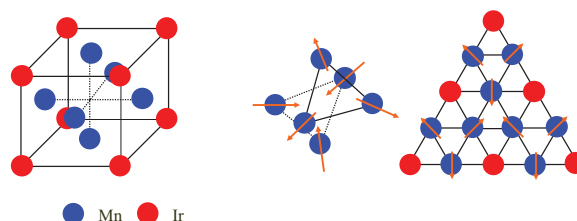


図 1. MnIr の結晶構造 (L12) とスピン配列 (3-Q)

試料

実験には以下のように設計した、スパッタ成長試料を用いた。

Ta (10 Å) / Ru (10 Å) / Co₇₀Fe₃₀ (200 Å) / Mn₇₃Ir₂₇ (50 Å) / Ru (50 Å) / Ta (50 Å) / Si (111)

下付きは原子%

バッファ層、キャップ層には Ta、Ru を使用した。面内に一方向異方性（バイアス）を付加するため、成長後 553 K で 1 時間の規則化処理を行い、印加磁場 3 kOe で磁場中冷却処理を行った。VSM による磁化測定結果を図 2 に示す。磁場は試料面内に印加している。異方性磁場 $H_{ex}=220$ Oe、異方性定数 $J_k=0.73$ erg/cm² である。

試料膜厚、ラフネスを X 線反射率により評価した。エネルギーは Ir L_3 端近傍 11222 eV である。図 3 に BL39XU における測定結果と構造モデルを仮定して計算した反射率とのフィッティング結果を示す。実験結果と計算は良い一致を示しており、所望の構造が作製できていることが分かった。X 線反射率から決定した CoFe/MnIr 二層膜の膜厚、界面 rms ラフネス、密度を表 1 に示す。

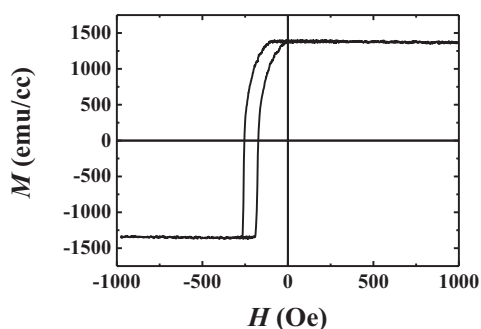


図 2. CoFe/MnIr 二層膜の磁化曲線（室温）

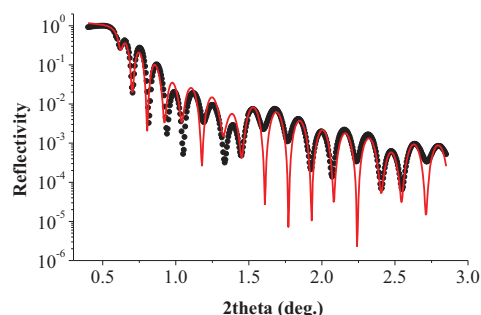


図 3. CoFe/MnIr 二層膜の X 線反射率測定 ($E=11222$ eV)

表 1. CoFe/MnIr 二層膜の膜厚およびラフネス

atoms	t (Å)	σ_{rms} (Å)	ρ_0 ($\times 10^{23}/\text{cm}^3$)
Ta	0.958	1.1024	5.55
Ru	0.958	1.1024	7.42
CoFe	223.26	1.1024	8.99
Mn ₃ Ir	49.891	1.1024	7.47
Ru	54.73	1.1024	7.42
Ta	54.732	1.1024	5.55
Si	-	1.1024	4.99

RXMR 測定

BL39XU において Ir L_3 吸収端近傍 11222 eV ($2p \rightarrow 5d$) で磁気反射率プロファイル測定を行った。ダイヤモンド二結晶分光器により単色化された水平偏光 X 線はダイヤモンド移相子によって円偏光に変換される。X 線ビームサイズは四象限スリットによって 0.5×0.5 mm² に調整した。試料の面内方向に磁場を印加するために小型電磁石を 4 軸回折計の χ サークルに取り付け、試料は磁極の間の ϕ 軸に取り付けた。入射 X 線強度はイオンチェンバー、散乱 X 線はアバランシェフォトダイオード (APD) 検出器によって検出した。計数には SR400 フォトンカウンターを用いた。

共鳴 X 線磁気反射率測定は一般的な反射率測定と同様に、入射、反射 X 線ベクトルを k, k' としてそのベクトルの差で表される散乱ベクトル $q=k'-k$ が q_z 方向に沿って変化するスキャンを行う。磁気反射率は以下の式で与えられる。

$$RXMR(2\theta) = \frac{I^+(2\theta) - I^-(2\theta)}{I^+(2\theta) + I^-(2\theta)}$$

式中の添え字は X 線ヘリシティを意味している。分母はヘリシティ和強度、分子は差強度である。

RXMR 測定結果および解析結果

APD 入射強度を Mo アッテネータで調整し、検出器が数え落としを起こさない領域で計数

を行った (約 1×10^6 cps)。外部磁場は試料面内方向に 1 kOe 印加した。 $2\theta=0.9\sim 3.0^\circ$ の区間を 0.02° 刻みで RXMR 測定を行った。図 4(a)の黒丸は Ir L_3 吸収端近傍 11222 eV での磁気反射率測定結果である。縦軸は磁気反射率強度を意味し、Ir スピン分極の存在を示すシグナルが得られていることが分かる。図 4(b)に Ir スピン分極分布モデルを示す。CoFe/MnIr 二層膜の界面 Ir に誘起されるスピン分極総量は極めて小さいため、Ir L_3 端 XMCD スペクトル測定から直接的に求める従来手法の適応が困難であった。そのため CoIr 合金膜の XMCD ピークに対する CoFe/MnIr のピークの比から算出する手法を

用いた。Ir スピン分極分布は、界面から $\exp(-x/\lambda)$ で減衰するモデルを仮定した。 $\langle fm \rangle$ は XMCD から求めた共鳴磁気散乱振幅の平均値を示し、各サブレイヤーの $fm/\langle fm \rangle$ が 1 の場合が MnIr 層内の Ir に均等にスピン分極が誘起されている状態を意味する。各モデルから計算された結果は図 4(a)の赤線で示されている。侵入長 $\lambda=0.3 \text{ \AA}$ とした界面集中モデルは実験プロファイルの振動、振幅をよく再現している。一方、 $\lambda=40 \text{ \AA}$ とした一様分布モデルでは振幅を再現しない。この結果から CoFe/MnIr 二層膜の Ir にはスピン分極が誘起され、その分布は界面に集中していることが示唆された。

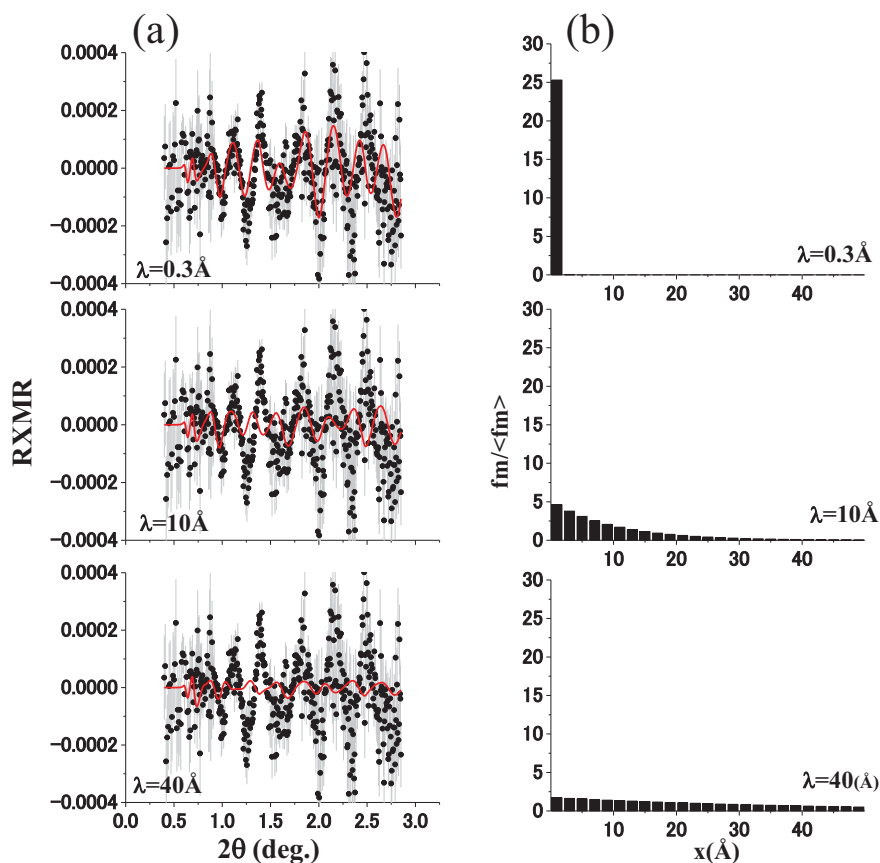


図 4. (a) Ir L_3 吸収端近傍(11222 eV) RXMR プロファイル(黒丸)および計算 (赤線)、(b)Ir スピン分極分布モデル

RXMR ヒステリシス測定

散乱角を固定した状態で RXMR 強度の磁場依存性を測定することによって元素選択磁気ヒステリシスの測定が可能である。注目元素について試料面内で平均した磁化の X 線方向への投影成分が RXMR を与える。このことから、面内磁場方向と X 線を平行にした配置（平行配置）では磁場にコリニアな磁化により、シグナルが生じる。また面内磁場と X 線が直交する配置（垂直配置）では磁場方向から傾いた磁化成分がシグナルを与える。界面に誘起された Ir スピンが磁場に対して平行な成分のみを持つのか、また傾いた成分を持つのかを明らかにする実験を行った。また CoFe 層の Co 元素選択磁化についても着目し、Ir のヒステリシスとの比較を行った。

$2\theta = 1.4^\circ$ で測定した Ir 選択的ヒステリシスの結果を図 5(a)に示す。平行配置（黒丸）ではヒステリシスが確認され、垂直配置（白丸）では常に一定値を示す結果となった。このことから Ir に誘起された分極の平均方向は磁場にコリニアであることが分かった。Co 選択的ヒステリシスは $2\theta = 1.8^\circ$ において、Co K 端近傍（7714 eV）で測定した。この測定で得られるのは、Co4p 電子の磁気分極である。測定結果を図 5(b)に示す。Ir の場合と同様に平行配置ではヒステリシスが確認され、垂直配置では常に一定値を示す結果となった。Ir と Co のヒステリシスで異なる点は、横シフトの量である。マクロな磁化曲線は 220 Oe のシフトがあるため Ir、Co ヒステリシスもその程度のシフト量を持つと予想されたが Co のヒステリシスでは約 50 Oe、Ir ではほぼゼロとなった。ただし、横シフト量を無視したヒステリシスの開きを比較すると 3 つのループはほぼ一致している。また、ヒステリシスの縦シフトに注目した場合、磁性に起因しないアーティフィシャルな縦シフト量は垂直配置のプロットと $y=0$ の差としてよい。平行配置の縦シフトはその値よりも大きいことが分かる。今後、この結果が意味する

ところを明らかにする必要がある。

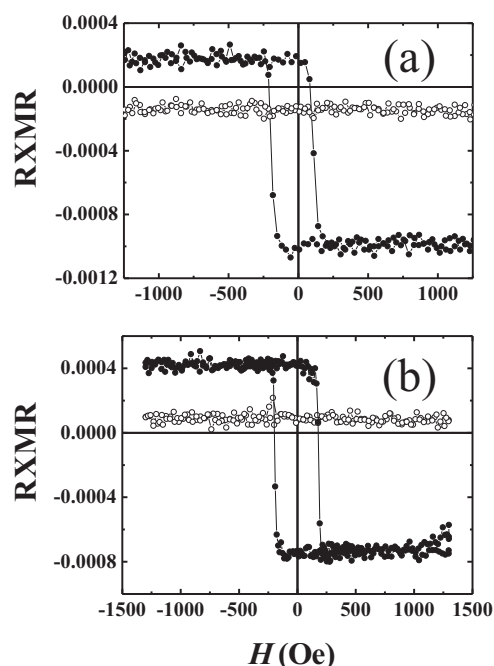


図 5. RXMR ヒステリシス測定 (a)Ir L_3 端ヒステリシス、(b)Co K 端ヒステリシス

まとめと考察

円偏光硬 X 線を用いた RXMR 測定によって CoFe/MnIr 二層膜の界面 Ir にスピン分極が誘起され、その分布は界面に集中している可能性が極めて大きいことが明らかになった。また RXMR ヒステリシス測定によって XMCD によるシグナル検出が困難であった Ir の元素選択ヒステリシスを測定することに成功した。Ir ヒステリシスの横シフトはマクロな磁化曲線と不一致である。縦シフトについては、アーティフィシャルな影響よりも大きなずれを観測した。過去に角田らによって同試料を用いて行われた Mn L_3 端、Co L_3 端 XMCD ヒステリシスでは縦シフトは観測されていない[5]。共鳴磁気散乱や XMCD がどの軌道の磁気分極を観測するかについて注意を払って、シフト量が物理的に意味をもつかどうか明らかにする必要がある。Ir 誘起スピン分極の原因としては Mn 非

補償スピン成分と CoFe 層の磁化が考えられる。どちらの影響が支配的か興味深い。強磁性層を Co にした場合と Fe にした場合で MnIr の Mn とのカップリング方向が逆方向になることがこれまでに報告されている [5]。Co/MnIr、Fe/MnIr 試料を用いて Ir の分極を探ることで新たな知見が得られるだろう。また Mn-X (X=Ir, Pt, Rh, Ru) 等白金族側を変化することで交換異方性磁場が変化することが言われており、その原因が非磁性側の電子状態に秘められている可能性が高い。系統的に明らかにすることで交換バイアスの起源の理解を進めることが可能になると考えられる。

参考文献

- [1] O. Zaharko et al., Phys. Rev. B **66**, 134406(2002).
- [2] S. Roy et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 047201 (2005).
- [3] C. Mitsumata and A. Sakuma: 日立金属技報 **19** 41 (2003).
- [4] M. Tsunoda et al., J. Appl. Phys. **101**, 09E510 (2007).
- [5] M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Lett. **89**, 172501 (2006).