

萌芽的研究支援課題 報告書

氏名(フリガナ) : 新井邦明(アライクニアキ)
所属機関 : 東京大学大学院
学年 : 博士課程 2 年
課題番号 : 2008A1726
利用ビームライン : BL25SU
課題名 : 界面酸化層に着目した Fe/NiO(100)における交換結合の研究
研究成果番号 :

研究背景

近年、反強磁性層と強磁性層の界面で生じる交換バイアスは、ハードディスクの読み取りヘッド等の磁気記録デバイスに利用されている。交換バイアスのメカニズムの解明は、磁気記録デバイスの更なる特性の向上に不可欠である。交換バイアスの大きさは、界面における交換結合状態、反強磁性磁気構造などに依存するため、界面における磁気状態について研究がなされてきた。磁気円二色性 (MCD) および磁気線二色性 (MLD) は元素選択的であるため、界面の磁気情報を取得するのに、強力な手法となっている。しかしながら、典型的な反強磁性体である NiO を基板とした系の交換結合について研究がなされているが、反強磁性スピンと強磁性スピンの結合状態について統一的な理解が得られていない[1-3]。その原因として、次の 3 点が挙げられる。① 界面の MCD および MLD は小さく、界面の磁気情報を詳細に得ることが困難である。② NiO の磁区構造は複雑であり、詳細な知見が得られていない。③ NiO の Ni L 吸収端における MLD について統一的な理解が得られていない。そのため、反強磁性磁区構造を深く理解し、NiO の MLD、界面における MCD を定量的に詳細に得る必要がある。これまで、NiO の結晶歪によるドメイン (T ドメイン) 内の 1 種類の S ドメインのみ (シングル S ドメイン) の観察による研究が支配的であったが[2,4]、我々は O 2p 軌道の異方性による線二色性 (LD) と光電子顕微鏡(PEEM)を用いることにより[5]、T ドメインを直線観察し、1つの T ドメイン内の 3 種類の S ドメインの観察、および、その領域に Fe 超薄膜をのせて、3 種類の S ドメインに対応した結合状態の観察に成功した。NiO は、 $\langle 111 \rangle$ 方向の結晶歪による 4 種類の T ドメインと、T ドメイン内に $\langle 11-2 \rangle$ 方向のスピンのによる 3 種類のドメイン(S ドメイン)を持つ。そのため、(100)表面に対するスピン軸のなす角度は、24.1 度と 54.7 度の 2 種類に分けることが出来る。(100)表面に強磁性薄膜をのせた場合、反強磁性スピン方向に依存したスピン結合状態、交換結合による界面近傍における反強磁性スピンのねじれ状態に差異が現れると期待できるため、詳細に交換結合状態を調べることができる。

実験目的

本課題では、反強磁性体 NiO(100)表面に Fe 超薄膜をのせた系 (Fe/NiO(100)) の T と S ドメイン、Fe 超薄膜と界面の磁区構造を観察することにより、反強磁性スピン容易軸に依存した界面の交換結合状態を詳細に調べることである。O K 吸収端における LD と Ni L₂ 吸収端における MLD および PEEM を用いて、T と S ドメインのアサインを行う。LD と MLD の面内角度依存性と結晶場効果などを取り入れた理論計算と比較することにより、NiO の MLD と LD を理解し、ドメインをアサインする。また、Fe L₃ 吸収端の MCD の面内角度依存性を調べることで Fe/NiO(100) の Fe 容易軸を調べる。これにより、Fe と Ni スピン容易軸の関係を調べ、界面の磁気エネルギー計算[6]と比較することにより、この系の交換結合状態を理解する。

実験方法

実験は、円偏光放射光の光源である BL25SU と PEEM を用いて行った。円偏光は、水平偏光と垂直偏光のコヒーレントな重ね合わせであり、光の(100)表面に対する入射角度は、90 度ではなく、30 度入射なので、円偏光を用いても MLD および LD を観測できる。NiO(100)表面は、へき開により得た。また、実験前にラウエ法による X 線結晶構造解析を行い、結晶構造を確認した。

NiO の T ドメインは O K 吸収端における LD、S ドメインは Ni L₂ 吸収端における MLD、Fe/NiO(100)界面の Ni スピンによる磁区構造は Ni L₃ 吸収端における MCD、Fe 超薄膜の磁区構造は Fe L₃ 吸収端における MCD を用いて観察した。始めに、T ドメイン内に 3 種類の S ドメインが存在する領域を探し、LD と MLD の面内角度依存性を取得した。その後、Fe 超薄膜を 0.7 nm その場蒸着した。膜厚は、Fe/NiO(100)における Fe と Ni L₃ 吸収端の吸収強度および Fe と Ni の secondary electron depth を考慮することにより、評価した。その後、LD、MLD、Fe と Ni L₃ 吸収端の MCD の面内角度依存性を取得することにより、バルクと界面の Ni スピン、Fe のスピン方向を決定した。また、NiO(100)へき開面に Fe を蒸着した際の反射高速電子線回折 (RHEED) 強度変化を観察したところ、振動が見られなかったため、単結晶成長ではなく、多結晶成長していると考えられる。

実験結果と考察

図1に Fe 超薄膜を蒸着する前の bare NiO(100)の(a)O K 吸収端と(b)Ni L₂ 吸収端における X 線吸収スペクトルを示す。LD イメージは、図 1(a)の A(531.4 eV)と B(532.3 eV)の photon energy で取得したイメージを割り算 (B/A) することにより取得した。2つのイメージを割り算することにより、光の強度ムラ等によるバックグラウンドを小さくコントラストを高めることができる。また、MLD イメージは、図 1(b)の A(870.1 eV)と B(871.2 eV)で取得したイメージを割り算 (B/A) することにより得た。LD と MLD は、図 1(a & b)の A と B で強く現れた。これは、これまでの我々による実験結果および以前の研究報告[2]と一致している。

図 2 に O K 吸収端における LD イメージと Ni L₂ 吸収端における MLD イメージを示す。O 2p 軌道の異方性により、交換歪みは生成するため、LD イメージは T ドメイン (図 2(a)) を反映する。一方

MLD イメージは Ni スピン軸の情報を示し S ドメイン (図 2(b)) を反映する。図 2(a) に示されている LD イメージには 4 種類のコントラスト (図中に 4 種類の色線で囲まれている) が存在している。これは、4 種類の交換歪み方向による T ドメインを示している。図 2(a) を見ると、[001] と [011] 方向に磁壁が存在している。これらは、バルクの磁壁方向をもち、過去の研究報告 [2,4,7-9] と一致している。また、図 2(b) をみると、1 つの T ドメイン (赤線で囲まれた領域) 内に 3 種類の色線で囲まれた領域が存在する。これは、3 種類の S ドメインを示している。バルクの NiO の結晶歪方向とスピン容易軸方向の関係は、NiO の結晶構造、磁気構造の対称性により成り立ち、それらによる磁気異方性エネルギー、磁気弾性エネルギー、弾性エネルギー、交換エネルギーの競合により存在する [9]。そのため、観察された T と S ドメイン構造は、バルクの NiO の磁区構造をほぼ反映していると考えられる。

LD と MLD イメージにおけるコントラストの面内角度依存性から T と S ドメインのアサインを試みた。MLD の面内角度依存性は、 $3\cos^2\theta - 1 \cdots (a)$ (θ : スピン軸と偏光ベクトルのなす角度) に依存すると仮定した [2,4,10]。また、O 2p 軌道は、 $\langle 100 \rangle$ 方向に存在すると考えられ、交換歪み方向を考慮すると、歪み方向と平行の $\langle 111 \rangle$ 方向に存在すると考えられる。LD の面内角度依存性は、 $\cos^2\alpha \cdots (b)$ (α : O 2p 軌道異方性と偏光ベクトルのなす角度) に依存すると仮定した。上記 (a) と (b) を用いて、T と S ドメインのアサインを試みたところ、アサインはできなかった。最近、Krug らにより、atomic multiplet theory に基づいた (a) 式を用いて S ドメインをアサインできないことを示唆する結果が報告されており、atomic ではなく、結晶構造を反映した理論により S ドメインをアサインする必要があると考えられる。

図 3 に図 2(b) の 3 種類の S ドメインにおける Ni L₂ 吸収端における吸収強度比 (図 1(b) の A/B) の面内角度依存性 (a) と、full multiplet splitting を考慮した NiO₆ 八面体クラスター計算結果 (b) を示す [11]。理論計算は、広島大学田中新先生に計算して頂いた。図 3(a) と (b) を比較すると定性的に一致し、この比較により S11 ドメインの容易軸方向を [-121]、S12 を [112]、S13 を [2-11] とした。

次に、Fe を蒸着し NiO(100) 表面に Fe 超薄膜 (膜厚 0.7 nm) をのせた結果を示す。膜厚は、Fe と Ni L₃ 吸収端の吸収強度と secondary electron sampling depth [12,13] を考慮して評価した。図 4 に Fe/NiO(100) の T ドメイン (a)、S ドメイン (b)、Fe の磁区構造 (c)、界面の磁区構造 (d) を示す。S ドメインに対応した Fe の磁区構造を見てみると、1 つの T ドメイン内のそれぞれの S ドメインに対応した Fe の容易軸を観察できた。また、Ni MCD イメージのコントラスト (d) は、Fe MCD イメージのコントラストを反映していることから、界面でコリニア結合が生じていることが分かった。

図 5 にアサインされた S ドメインの容易軸方向、観察された Fe の容易軸方向、および界面のスピン方向を示す。観察された 3 種類の Fe の容易軸方向のうち、[001]、[010] は、これまでに観察されていない容易軸方向である。また、3 種類の Fe の容易軸方向は、NiO の磁気構造と対応していることが分かる。また、Fe と NiO の容易軸方向のなす角度は、Ohldag らによる結果 [2] と比べて大きいことが分かった。そのため、我々によって見出された Fe と NiO のスピン配置では、磁氣的に不安定であると考えられるが、今後界面の磁気エネルギー計算 [6] との比較により検討する予定である。

参考文献

- [1] H. Matsuyama *et al.*, Phys.Rev.Lett. **86**.3419 (2001).
- [2] H.Ohldag *et al.*, Phys.Rev.Lett. **86**.2878 (2001).
- [3] E.Arenholz *et al.*, Phys.Rev.Lett. **98**, 197201(2007).
- [4] F.U.Hillebrecht *et al.*, Phys.Rev.Lett. **86**.3419 (2001).
- [5] T.Kinoshita *et al.*, J.Phys.Soc.Jpn. **73**, 2932(2004).
- [6] D. Mauri *et al.*,J.Appl.Phys.**62**,3047(1987).
- [7] G. A. Slack *et al.*, J. Appl. Phys. **31**.1571(1960).
- [8] W. L. Roth *et al.*, J. Appl. Phys. **31**.2000(1960).
- [9] T. Yamada: J. Phys. Soc. Japan **21**, 650(1966).
- [10] D.Alders *et al.*, Europhys. Lett. **32**, 259(1995).
- [11] A. Tanaka *et al.*, J. Phys. Soc. Japan **63**, 2788(1994).
- [12] R. Nakajima *et al.*, Phys. Rev. B **59**, 6421(1999).
- [13] H.Ohldag *et al.*, Phys.Rev.Lett. **87**.247201 (2001).

参考図

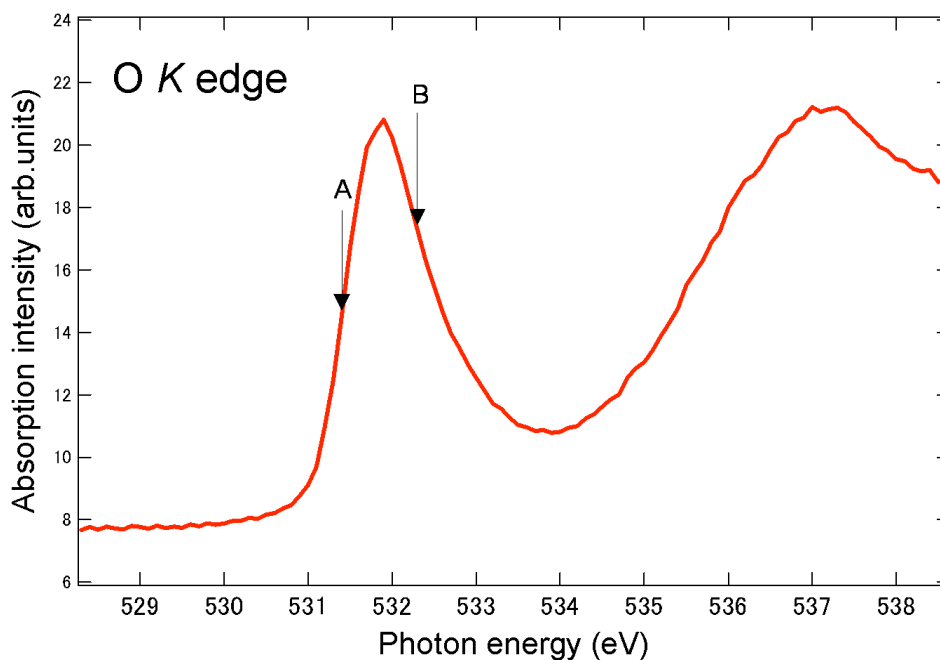


図1(a) NiO(100)の O K 吸収端における吸収スペクトル。A と B は、LD が強く観測される場所を示している。

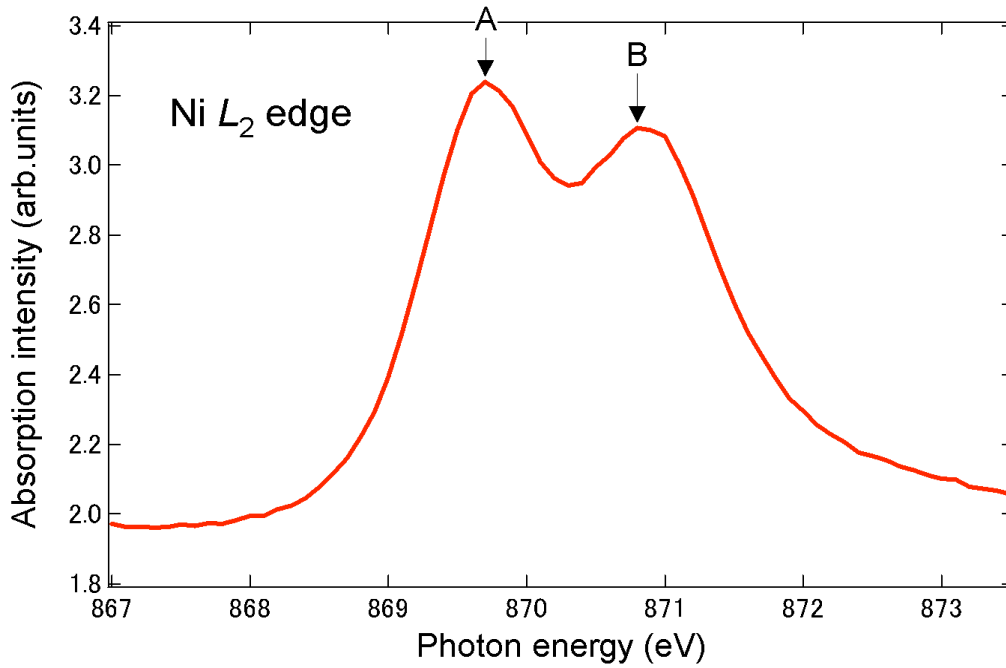


図1(b) NiO(100)のNi L₂吸収端の吸収スペクトル。AとBは、MLDが強く観測される場所を示している。

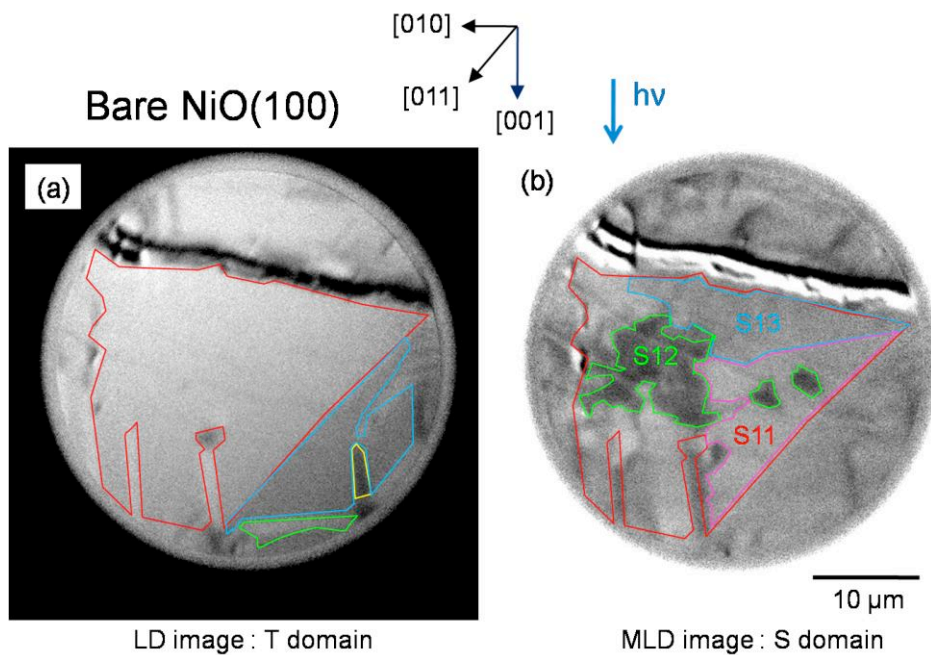


図2 NiO(100)のO K吸収端におけるLDイメージ(a)とNi L₂吸収端におけるMLDイメージ(b)。LDイメージはTドメイン、MLDイメージはSドメイン構造を示している。LDイメージには4種類のコントラストが存在していることが分かる。また、1つのTドメイン内に3種類のMLDコントラストが存在していることが分かる。

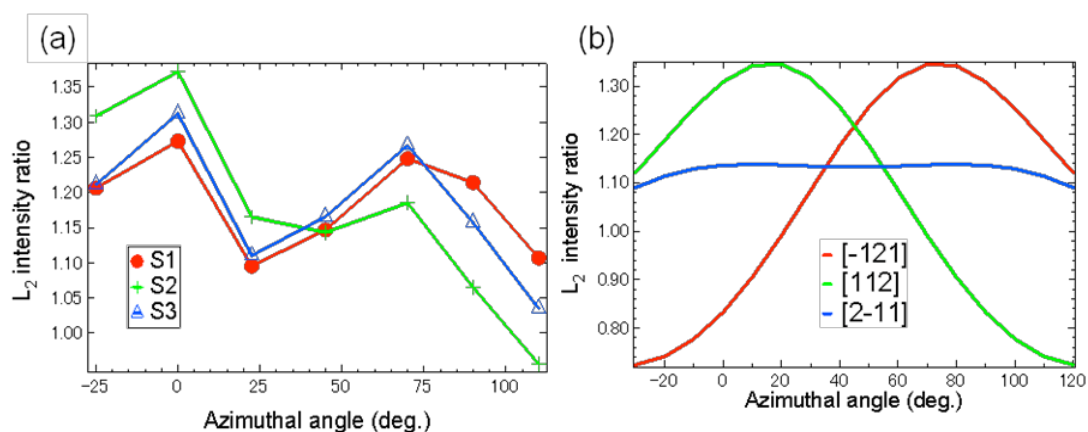


図 3 3 種類の S ドメイン(図 2(b))内の Ni L_2 吸収端における吸収強度比(図1(b)の A/B)の azimuth 依存性(a)。azimuth 0 度は、NiO(100)面に円偏光放射光が入射した際の波数ベクトルの射影成分が[001]の場合、90 度は[0-10]の場合を示している。(b)は Ni L_2 吸収端における full multiplet splitting を考慮した NiO₆ 八面体クラスター計算結果を示している。赤線が[-121]スピン軸、緑線は[112]、青線は[2-11]の場合を示している。

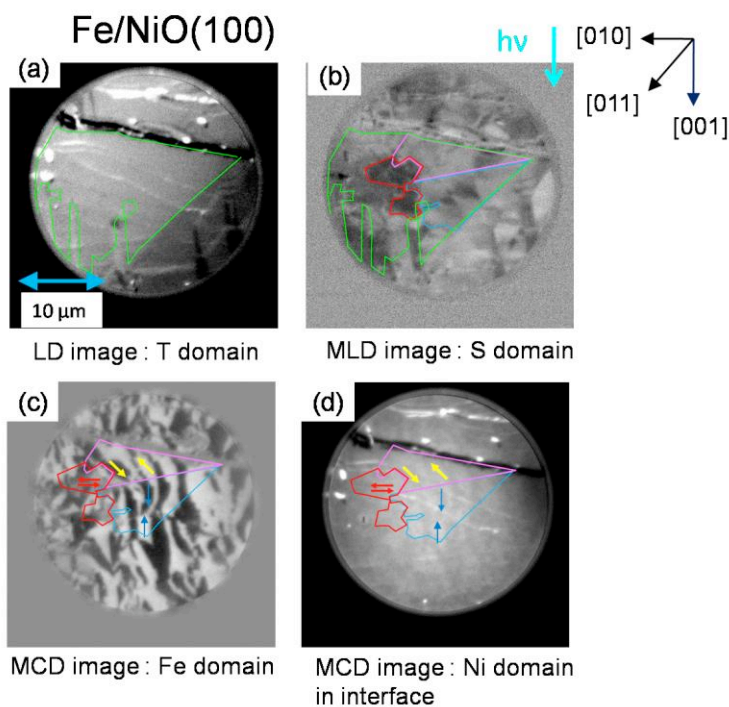


図4 Fe/NiO(100)の Tドメイン(a)、Sドメイン(b)、Fe の磁区構造(c)、界面の磁区構造(d)を示している。(a)と(b)の緑線は1つのTドメインの境界を示しており、(b)、(c)および(d)の赤、青、ピンクの線は、1つの Tドメイン内の 3 種類の Sドメインの境界を示している。(c)と(d)における矢印は、Fe と界面の Ni スピン方向を示している。

Fe容易軸とNiOのスピンの関係

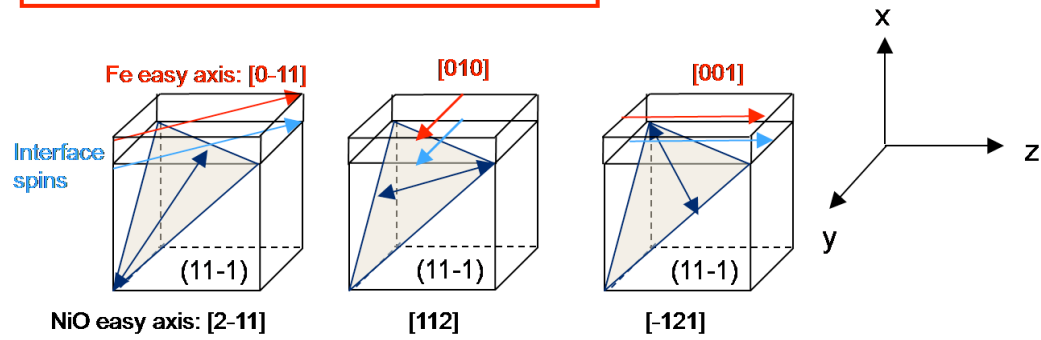


図5 観察された3種類のFe容易軸、界面のスピンの関係を示している。赤い矢印はFe容易軸方向、青い矢印は界面のスピンの方向、黒い矢印はSドメインの容易軸方向を示している。