

「サイト選択的な」2D-XMCD による磁性薄膜の研究 Magnetic thin film studied by “Site-selective” 2D-XMCD

松井文彦^{a,b}、加藤有香子^a、稲地加那子^a、松下智裕^c、郭 方准^c、大門 寛^{a,b}

Fumihiko Matsui, Yukako Kato, Kanako Inaji, Tomohiro Matsushita, Fang Zhun Guo^a, Hiroshi Daimon^b

^a 奈良先端科学技術大学院大学、^b 戦略的創造研究推進事業、^c 高輝度光科学研究センター

^aNAIST, ^bCREST-JST, ^cJASRI

Auger 電子収量法による X 線吸収分光法 (XAS: X-ray absorption spectroscopy) および X 線磁気円二色性法 (XMCD: X-ray magnetic circular dichroism) は表面感度に優れ、表面・薄膜・吸着種の構造解析の一つの代表的な手法であるといえる。しかし、直接得られるのは電子の平均自由行程範囲内の積算される情報である。深さ方向の構造情報を引き出す方法として表示型二次元分析器にて、光エネルギーを掃引しながら Auger 電子放出角度分布を測定する二次元 XAS / XMCD 法を開発した。同手法はサイト別の XAFS / XMCD を抽出し原子層ごとの電子 / 磁気構造が分かる、という特徴がある。今回、傾斜厚 Ni 薄膜試料を作成し、各膜厚での深さ方向の電子・磁気構造について研究した。

X-ray absorption spectroscopy (XAS) and x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) measurements by Auger electron yield detection are excellent methods for the study of surface, thin film, and adsorbate structures. However, all of the information from the atoms within electron mean-free-path region is averaged into the obtained spectra. In order to extract information along the depth direction, we have developed a two-dimensional XAS / XMCD method using display-type analyser which enables access to the electronic and magnetic structure of each atomic layer individually. Here we have applied this method to the study of electronic and magnetic structures of Ni thin film at atomic scale.

背景と研究目的

Cu(001) 表面上の Ni 薄膜には磁性と次元性の関係を解明する様々なヒントが内包されている。特に、膜厚が増大するにつれ容易磁化軸が面内から面直へ、さらに面内へと変化する特異なスピン配向転移は、多くの研究者をひきつけてきた¹⁾。しかし、原子レベルでの理解の前提となる深さ方向の原子・電子・磁気構造の情報を直接調べる手段はいまだに確

立されておらず、部分電子収量法による X 線磁気円二色性¹ 測定にて、電子脱出深さの差から深さ方向の磁気構造を解析した Amemiya らの成功例があるのみである²⁾。

我々は表示型二次元分析器²にて、光エネ

1 XMCD: x-ray magnetic circular dichroism

2 DIANA: display-type spherical mirror analyser

3 AIAD: Auger electron intensity angular distribution

4 XAS: x-ray absorption spectroscopy

5 FFP: forward focusing peak

6 EFM: evaporator with flux monitor

ルギーを掃引しながら Auger 電子放出角度分布³を測定する二次元 XAS⁴/XMCD 法を開発した。AIAD に現れる前方散乱ピーク⁵に注目すると、サイト別の XAS/XMCD を抽出し原子層ごとの電子/磁気構造について調べることができる。今回傾斜厚 Ni 薄膜試料を作成し、各膜厚での深さ方向の構造について研究した。

実験

実験は BL25SU の二次元光電子分光ステーションにて行った。試料は Ar⁺ イオンスパッタと加熱のサイクルにより清浄化した Cu(001) 表面上に Ni を蒸着した。蒸着には EFM⁶ を用い、可動シャッターと試料ステージを組み合わせて最大 10 原子層程度の傾斜膜厚薄膜を作成した。

光電子・Auger 電子の放出角度分布は DIANA を用いることにより一度に測定することができる。Fig.1 に示すように、試料から出た特定の運動エネルギーの電子は main grid と外球および obstacle rings の間の電場でその進路を曲げられて aperture に集束し、蛍光スクリーン上で輝点に変換される。蛍光ス

クリーンで観測される角度分布は試料から出たときの角度分布と厳密に等しいので、像が歪まない。角度範囲は $\pm 60^\circ$ である。蛍光スクリーン上の輝点の数及び位置は、真空中から CCD カメラシステムを用いて測定する。

前方散乱ピークと XAFS/XMCD

Auger 電子は周囲の原子のポテンシャルで散乱され、その角度分布に回折模様が現れる。光電子の運動エネルギーが低いときには後方散乱が支配的であるが、運動エネルギーが数百 eV を超えると原子結合方向に現れる前方散乱が顕著になる。FFP の方向からその周囲の原子配置を割り出すことができる。逆転の発想で、FFP の方位から励起原子が位置する層が特定できる。例えば {101} の FFP には二層目の原子から、[001] の FFP には三層目の原子からの寄与が主となる。

個々の Auger 電子 FFP 強度の光エネルギー依存性はいわば「サイト選択的な XAS」であるといえる。例えば化学シフトが小さいなどの通常の XAS 法では分離できないサイト別の構造解析が可能になる。例えば三層目の原子から見た 1 層目の FFP 強度から XAS を抽出すればそれは三層目の原子特有の XAS となる。この方法ではモデルの仮定なしに直接「サイト選択的な XAS」が測定できる点が特徴である。

さらにトップアップ運転と BL25SU で導入された 0.1 / 1 Hz kicker による円偏光極性高速切り替えシステムの恩恵でそのまま AIAD 測定による XMCD スペクトルが得られる。

結果、および、考察

【原子構造】STM と LEED による薄膜成長過

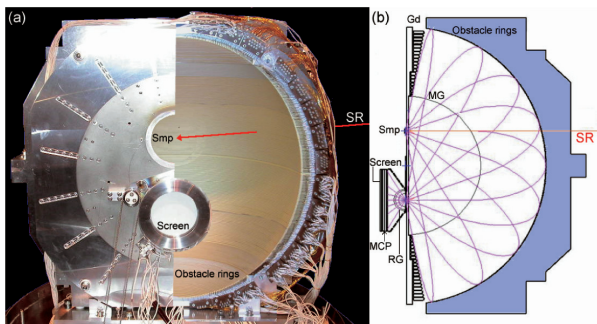


Fig. 1 (a) Front view (left) and interior (right) of DIANA installed at BL25SU, SPring-8. (b) Cross section of DIANA with trajectories of photoelectrons at a particular kinetic energy. SR: synchrotron radiation, smp: sample, MG: main grid, Gd: guard rings, RG: retarding grids, and MCP: microchannel plate.

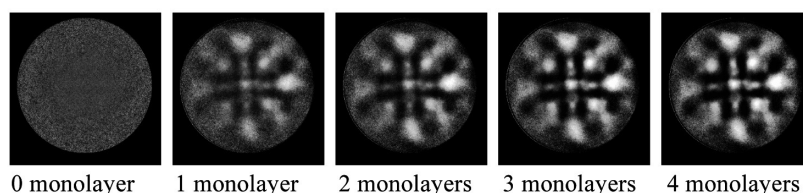


Fig. 2 Ni LMM Auger patterns from various thickness positions of Ni wedged film. Center and periphery of the patterns correspond to the emission angle of 0 and 56 degree off from [001] direction, respectively.

程の報告があるが、元素識別が困難なため、成長初期の最外層原子が Ni か、Cu か、の論争がある。Ni 1 原子層以下でも fcc の回折パターンが現れる (Fig. 2)。AIAD の解析から Ni が Cu と置換する様子が明らかになった。

【電子構造】 AIAD 中の各前方散乱ピーク強度の光エネルギー依存性は原子層別の XAFS スペクトルとなる。Fig. 3 に示すように表面 3 原子層までの各層に由来する L_3 ピークのエネルギーシフトを分離した。表面内殻シフトや Cu との混成について検討している。

【磁気構造】 L_3 吸収端での Auger 電子の放出強度は大きく、1 秒でも十分な質の画像が取得できる。1 Hz 円偏光極性高速切り替えシステムを用い、AIAD の円二色性を測定した。二次元 XMCD 法によるスピン配向転移付近

での原子層別のスペクトル分離に成功した。

参考文献

- 1) B. Schulz and K. Baberschke, Phys. Rev. B **50** (1994) 13467; F. Huang et al. Phys. Rev. B **49** (1994) 3962; W. L. O'Brien and B. P. Tonner, Phys. Rev. B **49** (1994) 15370.
- 2) K. Amemiya, et al., Phys. Rev. B **70** (2004) 195405; *ibid.* **71** (2005) 214420.

論文発表状況

- [1] F. Matsui et al., International Colloquium of magnetic film and surface, Sendai, 2006.
- [2] F. Matsui et al., European Conference of Surface Science, Paris, 2006.

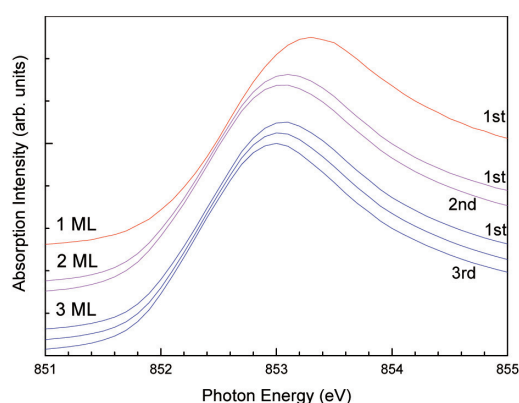


Fig. 3 Atomic layer-resolved Ni L_3 absorption spectra from different film thickness.