

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760026

研究課題名(和文) 鉄薄膜における表面・界面磁気異方性の解明

研究課題名(英文) Investigation of surface and interface magnetic anisotropy of iron thin films

研究代表者

河内 泰三 (Kawauchi, Taizo)

東京大学・生産技術研究所・技術専門職員

研究者番号：80401280

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：酸化マグネシウムMgO(100)基板の上にエピタキシャル成長した鉄薄膜Fe(100)/MgO(100)について、鉄薄膜成膜時に ^{57}Fe 安定同位体を薄膜の界面及び膜中にプローブとして挿入し、放射光励起 ^{57}Fe 核共鳴散乱法を用いて、Fe/MgO界面と鉄膜中の磁化方向を調べた。測定の結果、鉄膜中では面内磁化していたのに対して、界面においては鉄が面直磁化していることが判明し、この系では、界面面直磁化が膜中に向かって面内に向くという界面磁気キャンピング現象が起きていることが分かった。

薄膜の磁気異方性を議論する上で、界面磁気異方性を界面局在条件として考慮に入れる必要性が、本研究において、解明された。

研究成果の概要(英文)： We focused on the system of Fe(100) film epitaxial-grown on Magnesium oxide MgO(100). By inserting ^{57}Fe isotope layer at the interface of Fe/MgO and in the middle of Fe film, the magnetization directions at each position was investigated by the ^{57}Fe nuclear resonant scattering excited by synchrotron radiation. As a result, in contrast to the in-plane magnetization in the middle of Fe film, the magnetization direction at the interface of Fe/MgO was perpendicular to the substrate surface.

研究分野：応用物理学・工学基礎

科研費の分科・細目：薄膜・表面界面物性

キーワード：薄膜 磁性 界面

1. 研究開始当初の背景

(1) バルク磁性体の磁化方向は、スピン間相互作用とスピナー軌道相互作用によって決まる。磁性体が薄膜の場合、形状異方性と表面・界面に起因する磁気異方性が付加される。薄膜の表面・界面においては、対称性が低下するため、電子の軌道エネルギー準位が変化し、それに伴いスピナー軌道相互作用も変化するためである。これまで、薄膜の磁性は、これらの相互作用の競合の結果、磁性膜全体が均一な磁気異方性を示すと考えられてきた。

(2) しかしながら、表面・界面の磁気異方性項は局所的なものであり、磁化が同一膜内において均一な方向を示すとは限らない。実際に、理論研究によると、薄膜内部では面内磁化を示しているが、表面においては面直磁化を示すという現象が予測されている。これは“**surface magnetic canting**”と呼ばれている。しかし実験の難しさのため、これまで部分的に単結晶ガドリニウム表面での報告があるにすぎない。典型的な遍歴磁性体である鉄についても、理論上は予想されているが、“**surface magnetic canting**”の観測例はなかった。

我々は、近年、鉄強磁性薄膜において表面 2nm 程度の深さまではほぼ完全垂直磁化を持ち、薄膜全体では面内磁化を有する **surface magnetic canting** の存在を明らかにした。

2. 研究の目的

本研究では、さらに表面と同様に対称性の低下する界面に注目して $^{56}\text{Fe}(20\text{-x nm})/^{57}\text{Fe}(1\text{nm})/^{56}\text{Fe}(x\text{ nm})$ /基板試料を作製し、次の 2 つの項目について研究を行う。
(1) 磁気抵抗素子として実用上も重要な、 $\text{MgO}(100)$ に加えて $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板に成長させた鉄薄膜について、界面の磁化方向を観測する。

(2) 界面の磁気異方性: $x=0\text{nm}$ の試料についての測定から、鉄薄膜-基板界面における磁化の温度依存性を観測する。

3. 研究の方法

(1) 試料作成

$^{56}\text{Fe}(20\text{-x nm})/^{57}\text{Fe}(1\text{nm})/^{56}\text{Fe}(x\text{ nm})$ /基板($\text{MgO}(100)$, $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$)積層試料を超高真空中で作製する。

成膜の際には、薄膜成膜材料として ^{56}Fe 、 ^{57}Fe 安定同位体をそれぞれ富化した鉄蒸着材料を用いて二元蒸発源を用いることにより、基板上に ^{57}Fe プローブ層を挿入した試料を作成する。基

板のクリーニングから、 ^{57}Fe 及び ^{56}Fe 同位体の蒸着までを超高真空中において一貫して行い、成膜中の表面は高速電子線回折装置を用いて、その場観察し、表面構造解析を行う。

(2) 磁気異方性については、高エネルギー加速器研究機構、物質構造科学研究所の放射光研究施設において、放射光核共鳴散乱測定を行う。放射光核共鳴散乱法では、強磁性薄膜中の ^{57}Fe 原子核のゼーマン分裂して縮退の解けたエネルギー準位は、時間スペクトル上の量子うなりとして観測される。磁気双極子遷移で核共鳴吸収が生じる ^{57}Fe の場合、6本の遷移が許容されるが、直線偏光した放射光を励起光源として用いると、磁化方向を放射光の偏光方向の関係から、励起の選択則が生じる。この励起の選択則を利用すると、放射光反射配置で、試料への入射方位角を掃引することにより、界面、膜中に添加した ^{57}Fe 層の磁化方向を決定することが可能である。

この手法を用いて、基板 $\text{MgO}(100)$ 及び $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板上に、 ^{56}Fe 鉄薄膜と基板の界面に ^{57}Fe を添加した試料と、及び ^{56}Fe 薄膜中に ^{57}Fe を添加した試料それぞれに対して、時間スペクトルを測定して量子ビートの観測を行い、磁化方向が決定可能となるように、入射方位角をかえながら同様の測定を行った。次に、試料温度を真空中でセラミックヒーター加熱して、試料温度を変えながら量子ビート観測を行い、ゼーマン分裂の大きさの変化を調べ、磁化の臨界挙動を調べる。

4. 研究成果

$\text{MgO}(100)$ 基板及び $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板を超高真空中でクリーニングしたのちに、それぞれの基板に関して、図 1 (a) に示す ^{56}Fe 薄膜と基板界面に ^{57}Fe を添加した試料と、図 1 (b) に示す ^{56}Fe 薄膜の深さ方向で中央の位置に ^{57}Fe 層を添加した積層構造を持つ試料を真空蒸着法によって作製した。 ^{56}Fe 、 ^{57}Fe を交互に蒸着する際に、逐次高速電子線回折パターンを観測し、エピタキシャル成長していることを確認した。

成膜試料を、高エネルギー加速器研究機構、物質構造科学研究所、放射光研究施設の集光系のある PF-AR NE1A ビームラインにおいて、放射光核共鳴散乱実験を行った。放射光核共鳴散乱実験は、表面敏感となる放射光反射配置をとり、14.4keV の X 線の臨界面角近傍の視斜角で入射させた。放射光は、高分解モノクロメーターで、 ^{57}Fe 核共鳴エネルギー 14.413keV に単色化され、且つ集光ミラーにより、縦幅 $100\mu\text{m}$ に集光され、反射配置での核共鳴散乱に最適化した。

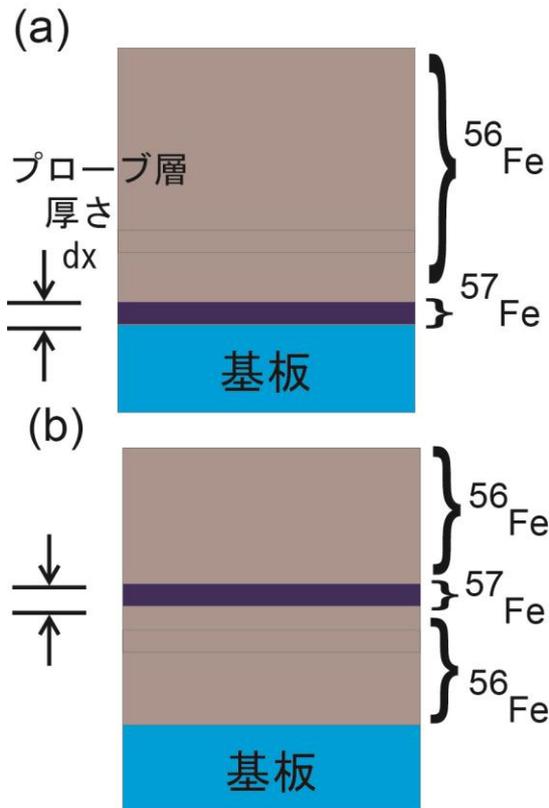


図1 57Feプローブ層を添加した鉄薄膜。界面(a)、膜中(b)

磁気異方性を調べるための方位角については、基板の表面の対称性からFe/MgO(100), Fe/Al₂O₃(0001)に関してそれぞれ45度間隔4方位、30度間隔6方位について、核共鳴散乱時間スペクトル測定を行った。まず、反射配置をとることにより、各試料に関してX線、及び核共鳴散乱X線の反射率曲線を測定した。X線反射率測定では、界面、表面の粗さを測定し、核共鳴散乱X線反射率測定では、57Feプローブ層からの信号強度が最大となるピークを測定した。

測定する方位毎に反射率測定を行い、核共鳴散乱強度を最適化した上で、時間スペクトル測定し、量子ビート観測を行った。量子ビート観測を行い、各試料の方位角掃引による量子ビートの強度比の変化について解析を行った。その結果、MgO(001)基板上的鉄薄膜に関しては、膜中は面内配向であったのに対して、界面については面直成分があると思われる結果となった。次に、Al₂O₃(0001)基板上的鉄薄膜に関しては、膜中、界面共に面内配向と思われる結果が得られた。

続いて、試料を真空装置中に設置し、ヒーター加熱しながら、核共鳴散乱時間スペクトル測定を行い、内部磁場の温度依存性を各試料について調べた。試料温度は熱電対で測定しながら、温度調節計を用いて一定温度を保持しながら時間スペクトル測定を行った。測定の結果、全ての試料に関して、3次元の磁性の理論曲線との相違があると思われる結果が得られた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2件)

1. T. Kawauchi, S. Kishimoto and K. Fukutani, Performance Recovery of Silicon-Avalanche-Photodiode Electron Detector by Low-Temperature Annealing, IEEE J. of the Electron Device Society, (査読有), Vol. 1, 2013, pp. 162-165
<http://ieeexplore.com/xpl/articleDetails.jsp?arnumber=6601677>
2. T. Kawauchi, H. Yonemura, S. Kishimoto and K. Fukutani, Hydrogen Redistribution and Performance Improvement of Silicon Avalanche Photodiode by Low-Temperature Annealing, IEEE Electron Device Letters, (査読有) Vol. 33, no. 8, 2012, pp. 1162-1164
http://ieeexplore.ieee.org/xpl/articleDetails.jsp?tp=&arnumber=6230606&contentType=Journals+%26+Magazines&ortType%3Dasc_p_Sequence%26filter%3DAND%28p_Publication_Number%3A55%2Cp_Start_Page%3A1162%2Cp_Volume%3A33%29

[学会発表] (計 6件)

1. 河内泰三、張 小威、福谷克之、放射光核共鳴散乱法を用いた鉄シリサイドのメスバウアースペクトル上四重極分裂の非対称性評価、第27回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2014年1月11日～2014年1月13日、広島国際会議場
2. T. Kawauchi, X. Zhang and K. Fukutani, Magnetic canting at the interfaces of Fe/MgO(001) and Fe/Al₂O₃(0001), IVC-19/ICN+T 2013 and patner conferences, 2013年9月9日～2013年9月13日, Paris, France
3. T. Kawauchi, Y. Yoda, X. W. Zhang, A. Ikeda and K. Fukutani, Nuclear resonant scattering of Krypton in amorphous solid water, International conference on the Applications of the Mössbauer effect 2013, 2013年9月1日～2013年9月6日, Opatija, Croatia
4. 河内泰三、張 小威、福谷克之、Fe/MgO(001)薄膜の界面磁気異方性、日本物理学会 第68回年次大会、2013年3

月 26 日～2013 年 3 月 29 日、広島大学

5. 河内泰三、依田芳卓、張 小威、池田暁彦、福谷克之、核共鳴散乱を用いた Kr ハイドレート形成過程の観測、第 26 回日本放射光学会 放射光科学合同シンポジウム、2013 年 1 月 12 日～2013 年 1 月 14 日、名古屋大学
6. 河内泰三、米村博樹、岸本俊二、福谷克之、Si-APD 電子検出器の電子線照射による劣化と熱処理による回復、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 11 日～2012 年 9 月 14 日、愛媛大学・松山大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

河内 泰三 (KAWAUCHI Taizo)

東京大学・生産技術研究所・技術専門職員

研究者番号：80401280