

新博士紹介

1. 氏名 今園孝志 (東北大・多元研)
2. 論文提出大学 東北大学
3. 学位種類 博士 (工学)
4. 取得年月日 2003年3月24日
5. 題目 軟 X 線発光分光による磁性多層膜界面の研究
6. 使用施設 (ビームライン) KEK-PF BL-16B, 3B

7. 要旨

巨大磁気抵抗効果の発見以来、磁性多層膜における磁気的層間結合の研究が活発化するとともに、それらの磁気デバイスとしての応用も進展している。それらの中で Fe/Si 多層膜は強い層間結合が現れることから注目を集め、様々な研究グループにより精力的な研究がなされてきた。しかし、その層間結合を媒介する物質及び発現のメカニズムについて統一した見解は得られていない。なぜなら、Fe と Si は相互拡散しやすい上に、各研究グループの成膜条件等の違いによって Fe/Si 多層膜に形成される界面層がそれぞれ異なるからである。また、層間結合は熱に対して弱いことが知られているが、結合を破壊する要因に関して明確に述べた報告はない。今後、層間結合を磁気デバイスとして応用する際、結合の耐熱性が問題となることが予想される。したがって、加熱前後の Fe/Si 多層膜界面に関する知見を得ることは重要である。そこで、多層膜界面の化学結合状態を非破壊的に観測することが出来る軟 X 線発光分光により、Fe/Si 多層膜の界面層を構成する物質及びその膜厚を特定し、結合発現のメカニズムを明らかにすること、及び層間結合の熱破壊の要因について明らかにすることを本研究の目的とした。

軟 X 線発光分光測定は KEK PF BL-16B (アンジュレータ) で主に行った。本研究で用いた分光器と平面結像型軟 X 線発光分光計のエネルギー分解幅は 100 eV でそれぞれ約 0.5 eV と 0.4 eV であった。

Fig. 1 に dc マグネトロンスパッタにより作製された 22 周期 Fe (3.0 nm)/Si (t) 多層膜 ($t=0.5, 1.0, 1.3, 1.5, 1.7, 2.0, 3.0$ nm) 及びアモルファス Si (a -Si) 単層膜の Si $L_{2,3}$ 軟 X 線発光 (SXE) スペクトルを示す。励起エネルギーは 120 eV、入射角は Fe/Si 多層膜の法線から計って 60° である。図中左の F, AF 及び NC はそれぞれ強磁性結合、反強磁性結合及び非結合状態を表わす。この SXE スペクトルの Si 層厚 t 依存性から Fe/Si 多層膜界面に Fe-Si 化合物が形成されていることが分かる。

Fe-Si 系状態相図によると、室温で安定な化学量論的化合物として Fe_3Si , $FeSi$ 及び $FeSi_2$ が存在するので、**Fig. 2** のような界面層モデルを仮定した。そして、アモルファス $Fe_{1-x}Si_x$ (a - $Fe_{1-x}Si_x$) 合金 ($x=0.25, 0.50, 0.67$), a -Si ($x=1.00$) 及び SiO_2 の Si $L_{2,3}$ 発光スペクトルを用いて Fe/Si 多層膜のそれを表わすことにより、各界面層厚を見

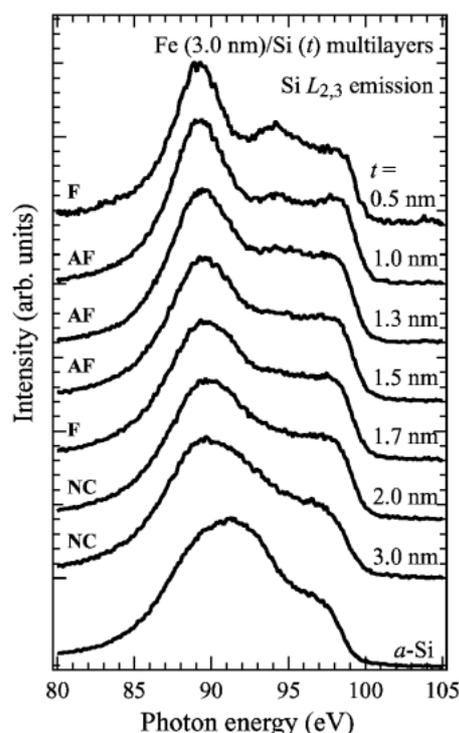


Figure 1. Si $L_{2,3}$ emission spectra measured for Fe (3.0 nm)/Si (t) multilayers and an a -Si single-layer sample.

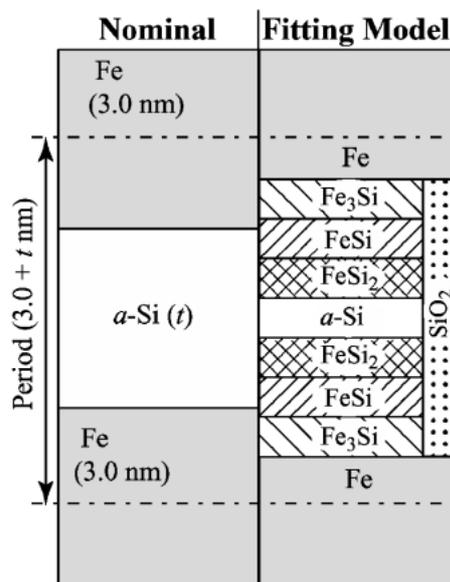


Figure 2. The interdiffusion model used in this study.

積もった。ただし、これらの組成比に一致する $Fe_{1-x}Si_x$ 合金を用意することが出来なかったため、 a - $Fe_{1-x}Si_x$ 合金 ($x=0.19\sim 0.73$) の Si $L_{2,3}$ 発光スペクトルから Si 組成比 x に関して補間して得たスペクトルを用いた。解析の結果、最も強く AF 結合した Fe/Si (1.3 nm) 多層膜の界面には a -Si 層は存在せず、約 0.5 nm 厚の金属的強磁性

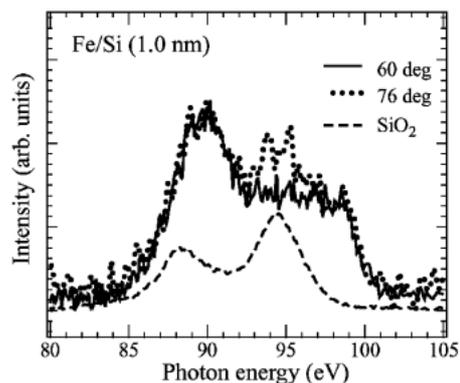


Figure 3. Si $L_{2,3}$ emission spectra measured for an Fe (3.0 nm)/Si (1.0 nm) multilayer for angles of incidence of 60° (solid) and 76° (dotted). Dashed line shows that of SiO₂ for comparison.

α -Fe₃Si 層及び約0.7 nm 厚の絶縁体的非磁性 α -FeSi₂ 層が存在することが分かった。そして、絶縁体的 FeSi₂ をスペーサとする量子波干渉モデルから得た層間結合定数と実験値はほぼ一致した。このことから層間結合を媒介する物質は絶縁体的 FeSi₂ 層であり、結合発現のメカニズムは量子波干渉モデルで説明出来ることが分かった。

全反射臨界角付近では屈折波は媒質内部に侵入せず、表面から波長程度浸透するだけである。これを利用すると表面付近の界面層の情報を引き出すことが期待できる。Fig. 3 に励起光の入射角を二通り選んだ時の Fe (3.0 nm)/Si (1.0 nm) 多層膜及び SiO₂ の Si $L_{2,3}$ 発光スペクトルを示す。励起エネルギーは155 eV である。この時、最上層である Fe の臨界角は76°である。94.5 eV 付近に発光スペクトルの入射角依存性が現れているのが分かる。解析の結果、このピークは Fe/Si 多層膜の表面付近のみに分布する SiO₂ 層からの発光であることが分かった。また、入射角によって界面層厚は変化しないはずであるが、76°入射の時の Fe₃Si 層厚は60°入射の時のそれに比べほぼ半減することが分かった。この原因を Fig. 2 の界面層モデルで説明する。60°入射では励起光は Fe/Si 多層膜の数周期分まで侵入することが出来るので、上下2層分の Fe₃Si 層の発光を観測することが出来るが、76°入射では励起光の浸入深さは4 nm 程度 (Fe の場合) であるため FeSi₂ 層の下にあるもう一つの Fe₃Si 層からの発光を観測できない。

このことが見かけ上 Fe₃Si 層厚を半減させる要因であると考えられる。以上のことから、励起光の全反射臨界角を利用した解析法が有用であること、及び本研究で仮定した界面層モデルは妥当である結果を得た。

AF 結合した50周期 Fe (0.85 nm)/Si (1.35 nm) 多層膜 (as-deposited) を用意し、これを300°C及び600°Cで5時間アニールした。磁化測定から、300°C以上の加熱によって層間結合は破壊されることが分かった。また、300°Cアニール Fe/Si 多層膜の多層構造は維持されるが、600°Cアニール Fe/Si 多層膜ではほぼ破壊されたことが分かった。そこで、Si $L_{2,3}$ SXE スペクトルの温度依存性を測定し、上で述べた解析法を用いて界面層を評価した。その結果、as-deposited Fe/Si 多層膜の場合、全ての Fe 層及び Si 層が強磁性 Fe₃Si 層と非磁性 FeSi₂ 層に変化していたことから AF 結合を媒介する物質は FeSi₂ であることが分かった。これは上の結果と一致する。次に、300°Cアニール Fe/Si 多層膜の界面層は Fe₃Si 層及び FeSi 層が支配的であり、FeSi₂ 層は存在しないことが分かった。このことから、加熱により FeSi₂ は FeSi に変化したために結合が破壊されたと考えられる。最後に、600°Cアニール Fe/Si 多層膜の場合、膜全体が結晶性 FeSi 層に変化したことが分かった。以上のことから、AF 結合した Fe/Si 多層膜の磁性の変化は、界面層を構成する物質が結合の媒介物質である FeSi₂ から FeSi に変化したためであることが分かった。

軟 X 線発光分光により非破壊的に Fe/Si 多層膜界面を評価した結果、複数の界面層が存在することが分かった。そして、強い層間結合を媒介する物質は約0.7 nm 厚の絶縁体的 FeSi₂ であること、及び結合発現のメカニズムは量子波干渉モデルで説明出来ることを明らかにした。また、Fe/Si 多層膜表面付近のみに SiO₂ が存在すること、及び本研究で仮定した界面層モデルが妥当であることを示した。更に、加熱による Fe/Si 多層膜の磁性の変化は、結合を媒介する FeSi₂ が FeSi に変化したためであることを明らかにした。本研究の成果は実用的な反強磁性結合 Fe/Si 多層膜素子の開発に重要な指針を与えるであろう。

(受付番号01074)