Co/Cu(001) 超薄膜の磁気光学スペクトルのその場観察

In-Situ Observations of Magneto-Optical Spectra for Co/Cu(001) Ultrathin Films

中島健太郎*・宮崎照宣

東北大学工学部, 仙台市青葉区荒巻字青葉 (〒980)

*日本学術振興会特別研究員

K. Nakajima and T. Miyazaki

Faculty of Engng., Tohoku Univ., Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980

The magneto-optical properties of ultrathin fcc Co films epitaxially grown on Cu(001) surfaces were investigated. The growth conditions were optimized and the RHEED patterns of Co ultrathin films revealed streaks reflecting the symmetry of the fcc Cu(001) surface. Longitudinal Kerr hysteresis loops were square for Co coverage thicknesses beyond 6Å, and were detected down to 4Å. Longitudinal Kerr rotation and ellipticity spectra were measured over the photon-energy range from 2.0 to 4.6 eV, after Co coverage deposition of each. The off-diagonal elements of the conductivity tensor ($\omega\sigma_{xy}$) were evaluated. When the Co coverage thickness is 50Å, the shapes of both $\omega\sigma'_{xy}$ and $\omega\sigma''_{xy}$ spectra showed essentially the same features as those of 1000Å thick fcc Co films. When the Co thickness decreased below 50Å, $\omega\sigma''_{xy}$ became smaller in magnitude. The decrease in $\omega\sigma''_{xy}$ is discussed in relation to the Co/Cu interlayer number.

Key words: magneto-optical Kerr effect, ultrathin Co film, conductivity tensor, Co/Cu interlayer

1. はじめに

近年、超薄膜や薄膜成長過程における磁性を評価する手段の一つとして、磁気光学効果の測定が関心を集めている。磁気光学効果は、感度が高くまた膜の表面状態に敏感であり、超薄膜の磁性を評価する手段として有効である。またそのエネルギー・スペクトルが強磁性体の電子構造を反映しているという点で、物性的にも興味深い。

可視・近紫外域での磁気光学効果は、主にフェルミ面近傍の d-state から s,p-state へのバンド間遷移で生じると考えられる¹⁾。伝導率テンソルの非対角項 $\omega\sigma''_{xy}$ は、この遷移による磁気光学吸収の大きさを表しており、スピン偏極度、スピン軌道相互作用の大きさが変わらない範囲においては、左右円偏光に対する連結状態密度の差に比例する²⁾。したがって超薄膜において、その $\omega\sigma''_{xy}$ スペクトルを評価することで、フェルミ面近傍の非占有、

占有状態の状態密度を評価できる可能性がある^{3), 4)}。

我々は、このような観点から、強磁性超薄膜の磁気光学効果に関する研究を進めている。本研究では、代表的なエピタキシャル膜である fcc Co/Cu(001) 超薄膜を作成し、その磁気光学カー効果を超高真空中でその場観察した。fcc Co は、バルクでは高温相として存在する。しかし Cu 単結晶上に作成した Co では、fcc Cu との格子不整合が約 2% と小さいため、Cu 上にエピタキシャル成長し、室温で約数 10Å まで、Cu の格子定数を引き継いだ pseudomorph として存在することが知られている⁵⁾。

本論文では、fcc Co 超薄膜の磁気光学カー効果のその場観察の結果から $\omega\sigma_{xy}$ スペクトルを求め、その膜厚依存性について検討を行った。

2. 実験方法

電子ビーム加熱蒸着法により、試料を作製した。Cu(001) 基板は、MgO 単結晶 (001) 上に Cu をエピタキシャル成長させて作製した。800°C の加熱により表面を清浄にした MgO(001) 基板に、Cu と MgO の格子不整合を緩和するための 1000Å の Ag のバッファ層を介して、Cu を 2000Å 蒸着した。Cu 蒸着後、300°C、1 時間の熱処理を行い、ついで Co 超薄膜を成長させた。蒸着時の基板温度はいずれも室温、蒸着速度は、Ag および Cu は 20Å/min, Co は 4Å/min とした。蒸着時の真空度は 10^{-10} ~ 10^{-9} Torr であった。膜厚は水晶振動子膜厚計により測定し、2 基のシャッターにより膜厚を制御した。反射高速電子線回折および原子間力顕微鏡で、それぞれ膜の結晶構造、平坦性を評価した。

磁気光学カー効果の測定は、ファラデーセル偏光面変調法により、p-偏光を用いてエネルギー範囲 2.0~4.5 eV で行った。楕円率の測定にはバビネソレイユ位相板を用いた。磁界配置は縦カー配置であり、[110] 方向に磁界を印加した。分光測定時には、真空窓に生じるファ

(a) Cu (001) surface

(b) Co 50 Å / Cu(001)

Fig. 1 RHEED patterns for [110] azimuth from a (a) Cu(001) surface and (b) 50Å Co epitaxially grown on a Cu(001) surface. The primary energy of the electron beam is 15 kV.

ラダー効果の影響を軽減するため、残留磁化状態で測定を行った。印加磁界は 1 kOe である。測定中の真空度は 5×10^{-9} Torr 以下、温度は室温である。

3. 実験結果および考察

Figs. 1(a), (b) に Cu 単結晶基板および Cu(001) 上にエピタキシャル成長した膜厚 50Å の Co の RHEED パターンを示す。fcc の対称性を示すストリークパターンが見られ、fcc Co がエピタキシャル成長していることが分かる。原子間力顕微鏡による観察では、膜表面には、10Å 程度の段差で区切られた一辺 1000Å 程度の平坦な領域が一樣に広がっており、その領域内での平均粗さ R_a は 1Å 以下であった。

Fig. 2 に fcc Co/Cu(001) 超薄膜の縦カー回転角ヒステリシスループの数例を示す。 $d_{Co}=4\text{Å}$ からループが観測された。 $d_{Co}=6\text{Å}$ 以上ではループの角形比はほぼ 1 であり、磁化容易軸が膜面内にあることを示しているが、これは強磁性共鳴による実験結果⁶⁾と一致している。一方ヒステリシスループから求めた保磁力は、Co 膜厚 4Å から 12Å の範囲で、膜厚に比例して増大する。de Miguel らは、Co/Cu(001) 超薄膜の SMOKE の温度変化を測定し、 $d_{Co}=2\sim 5\text{Å}$ の範囲でキュリー温度を調べた⁵⁾。その報告によると、キュリー温度は $d_{Co}=4\text{Å}$ では室温程度であり、膜厚の増加に伴い直線的に上昇する。本実験の結果はこの報告とほぼ一致しており、膜厚に比例した保磁力の増大はキュリー温度の上昇を反映してい

Fig. 2 Longitudinal Kerr rotation hysteresis loops for fcc Co/Cu(001) ultra thin films.

ると考えられる。

Fig. 3 に縦カー回転角 θ_k 、楕円率 η_k のスペクトルを示す。 $d_{Co}=50\text{Å}$ の θ_k , η_k スペクトルは、その大きさを 1/2 にして示した。 $d_{Co}=50\text{Å}$ では、 η_k スペクトルが 4.3 eV 付近にブロードなピークをもつ、これに対応して θ_k スペクトルは分散型の形状を示しており、3.8 eV で符号が逆転する。また η_k スペクトルには、2.3 eV 付近に小さな山が生じている。膜厚が減少すると、スペクトルの大まかな形状は変化しないが、 η_k スペクトルのピークがよりブロードになり、それに対応して θ_k スペクトルが 0 を横切る位置が、高エネルギー側へシフトしている。

超薄膜の縦カー回転角、楕円率の大きさは、膜の伝導率テンソルの非対角項 $\omega\sigma_{xy}$ だけでなく、膜厚 d と膜および基板の伝導率テンソルの対角項 σ_{xx} にも依存する。そこで超薄膜化による磁気光学効果の変化をより明確にするために、測定結果から $\omega\sigma_{xy}$ を計算した。計算式は、Bader らの与えた多層膜中の光の伝搬を記述する行列式⁷⁾から導出した。式導出の際、膜厚に関して二次以上の項は無視している。この近似による $\omega\sigma_{xy}$ の誤差は、 $d_{Co}=50\text{Å}$ で 5% 以下である。また計算には、Co および Cu

Fig. 3 Longitudinal Kerr rotation and ellipticity spectra for fcc Co/Cu(001) ultra thin films.

の σ_{xx} が必要であり、特にCoでは、超薄膜化によりそのスペクトルがバルクとは変化している可能性がある。しかしここでは、測定波長領域でのCoの σ_{xx} の変化が比較的にブロードであること^{8),9)}から、その超薄膜化による変化が比較的小さいと仮定して、Co, Cuの σ_{xx} として約300Åの厚膜の値⁹⁾を用いた。

Fig. 4に計算結果を示す。図中には、 $d_{Co}=20\text{\AA}$ の膜について θ_k, η_k の測定精度から求めた誤差をエラーバーで示している。図中の実線は、最近報告されたCu(001)上にエピタキシャル成長した1000Åのfcc Coの極カー回転角、楕円率スペクトル¹⁰⁾から、超薄膜の場合と同様にして計算した結果である。 $d_{Co}=1000\text{\AA}$ の $\omega\sigma''_{xy}$ スペクトルは、1.6 eVおよび3.9 eV付近にブロードなピークをもつ。 $d_{Co}=50\text{\AA}$ の $\omega\sigma''_{xy}$ スペクトルは、その傾向が厚膜のそれとほぼ一致している。 η_k スペクトルに見られた2.3 eV付近の小さな山は、 $\omega\sigma_{xy}$ スペクトルには見られず、基板のCuの吸収端に由来していると考えられる。膜厚が減少しても、スペクトルの形状は、カー回転角、楕円率スペクトルと同様、大まかには変化しない。しかし $\omega\sigma''_{xy}$ の大きさは、膜厚の減少とともに測定した全エネルギー範囲で減少していることが分かる。

先に述べた保磁力の膜厚依存性、またde Miguelらの報告⁵⁾から考えると、Co/Cu(001)超薄膜のキュリー温度は、 $d_{Co}\geq 10\text{\AA}$ ではほぼバルクと同程度であると考えら

Fig. 4 Spectra of the xy -component of the conductivity tensor for fcc Co/Cu(001) ultra thin films. The solid lines represent calculation for fcc Co using experimental data of 1000Å thick fcc Co films¹⁰⁾.

れる。しかし、 $d_{Co}=20\text{\AA}$ の $\omega\sigma''_{xy}$ の大きさは、 $d_{Co}=50\text{\AA}$ のそれに比べて70%程度にまで減少しており、また $\omega\sigma''_{xy}$ の減少が、測定した全エネルギー範囲で生じていることを考え合わせると、Cu基板との界面に、磁気光学効果にあまり寄与しないCoのlayerが新たに形成されている可能性が考えられる。CoはCu中にほとんど固溶しない。しかしCoとCuの界面では、Co 3d電子とCu 4s電子のとのhybridizationにより、Coの状態密度はバルクとは異なっていると予想される。これについて、CoとCuの界面では、Coのminority spinの状態密度が増大し、その磁気モーメントがバルクに比べ10%程度減少するとの理論計算¹¹⁾がなされている。またこのようなCoの状態密度の変化は、Co/Cu(001)超薄膜のキュリー温度を低下させる一つの原因とも考えられている⁵⁾。そこでCoとCuの界面の効果を評価するために、表面をCuで覆った試料(Cu/Co/Cu)、またCoでCuを挟んだ三層膜の試料(Co/Cu/Co/Cu)を作成し、CoとCuの界面の数を変化させ、その $\omega\sigma_{xy}$ スペクトルを調べてみた。

Fig. 5に $\omega\sigma_{xy}$ スペクトルを示す。比較のため、同じ磁性層厚の単層膜のスペクトルも併せて示している。スベ

Fig. 5 $\omega\sigma_{xy}$ spectra for Co ultra thin films with various film structures.

クトルの形状は、膜の構造にほとんど依存していない。全磁性層厚で考えると、 $d_{\text{Co}}=10\text{\AA}$ の $\omega\sigma_{xy}$ の大きさは、 $d_{\text{Co}}=20\text{\AA}$ のそれに比べ、全測定領域で 20% 程度減少している。しかし Co/Cu の界面数の違いによる $\omega\sigma_{xy}$ の大きさの変化はほとんど見られなかった。

このことから、Co/Cu(001) 超薄膜での $\omega\sigma_{xy}$ の減少は、Cu との界面の効果によって生じたものではないと考えられる。他の原因の一つとして、超薄膜化による Co の電子状態の変化が挙げられる。これについてより厳密な議論を行うためには、伝導率テンソルの対角項 σ_{xx} にあまり依存しない極カー効果による測定が必要であると考えられ、現在検討を行っている。

4. ま と め

Cu(001) 上にエピタキシャル成長した fcc Co 超薄膜の磁気光学カー効果を超高真空中でその場観察し、以下の結果を得た。

(1) 磁気光学カー効果は、 $d_{\text{Co}}=4\text{\AA}$ から室温で強磁性を示す。磁界を [110] に印加した場合、 $d_{\text{Co}}\geq 6\text{\AA}$ ではループの角形比はほぼ 1 である。

(2) 2~4.5 eV の範囲では、膜厚の減少とともに全範囲において $\omega\sigma_{xy}$ の大きさが減少する。これは Cu 基板との界面の効果ではないと考えられる。

謝 辞 fcc Co の磁気光学効果について議論してくださった、IBM, Almaden の Dr. T. Suzuki に感謝いたします。本研究は、日産科学技術振興財団および文部省科学研究費（特別研究員奨励費）の援助により行われた。

文 献

- 1) M. Singh, C. S. Wang and J. Callaway: *Phys. Rev. B*, **11**, 287 (1975).
- 2) J. L. Erskine and E. A. Stern: *Phys. Rev. B*, **8**, 1239 (1973).
- 3) Y. Suzuki, T. Katayama, K. Sato, S. Yoshida and K. Tanaka: *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3355 (1992).
- 4) A. Yamaguchi, S. Iwata, S. Tsunashima and S. Uchiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**, L1599 (1992).
- 5) J. J. de Miguel, A. Cebollada, J. M. Gallego, R. Miranda, C. M. Schneider, P. Schuster and J. Kirschner: *J. Magn. Magn. Mat.*, **93**, 1 (1991).
- 6) B. Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirschner, Z. Celenski, A. S. Arrot and K. Myrtle: *Phys. Rev. B*, **44**, 9348 (1991).
- 7) J. Zak, E. R. Moog, C. Liu and S. D. Bader: *J. Magn. Magn. Mat.*, **89**, 107 (1990).
- 8) A. Y-C. Yu, T. M. Donovan W. E. Spicer: *Phys. Rev.*, **167**, 670 (1968).
- 9) P. B. Johnson and R. W. Christy: *Phys. Rev., B*, **9**, 5056 (1974).
- 10) P. B. Johnson and R. W. Christy: *Phys. Rev., B*, **6**, 4370 (1972).
- 11) T. Suzuki *et al.*: presented at Annual Conf. Magnetism Soc. Japan, Sept. 1993, and to be published.
- 12) Ru-qian Wu and A. J. Freeman: *J. Magn. Magn. Mat.*, **116**, 202 (1992).

1993 年 10 月 14 日受理, 1994 年 1 月 28 日採録