強磁場を用いた二次元金属超薄膜の電子スピン共鳴・強磁性共鳴による スピン挙動の解明

Study on electron spin resonance and ferromagnetic resonance of two-dimensional metallic thin films using high magnetic fields

東北大・金研 水口 将輝, 岡 航平, 小嶋 隆幸, 三谷 誠司, 高梨 弘毅 M. Mizuguchi, K. Oka, T. Kojima, S. Mitani, and K. Takanashi IMR, Tohoku Univ.

1. はじめに

電子の持つ二つの自由度である「スピンと電荷」 を組み合わせようという"スピントロニクス"の分 野が近年非常に注目を集め、目覚ましい発展を遂げ ている。この萌芽的分野の中でも根幹をなす結晶成 長技術の向上が、薄膜のエピタキシャル成長を可能 にしてきた。しかしながら、磁気トンネル接合素子 や、スピン共鳴トンネルトランジスタといった、ス ピン依存伝導現象を利用するデバイスの諸構造は既 にナノスケールとなっているにもかかわらず、例え ば二次元金属超薄膜などにおけるスピンの歳差、散 乱、あるいは磁壁の量子的揺らぎなどの基礎物性は 明らかになっていない。そのため、現実的なスピン デバイスへの応用のためには、解明すべき点がいま だ多いのが現状である。そこで、本研究ではエピタ キシャル成長させた金属超薄膜の電子スピン共鳴 (ESR)および強磁性共鳴(FMR)の測定を強磁場中で 行い、電荷自由度とスピン自由度に関する動的特性 (ダイナミクス)の解明を目指す。特に、強磁場を用 いることにより、比較的高周波帯域におけるスピン 歳差運動の観察や、スピン注入・スピン蓄積現象に 大きく影響する薄膜内の伝導チャンネルおける欠陥 やピニングサイトに関する知見を得ることができる はずである。これらより、超薄膜の膜厚に依存した スピン挙動の形態が明らかになり、二次元性金属に 特有の物理現象を導き出すことができる。これらは、 本研究の最終的な目標である「エピタキシャル二次 元金属超薄膜の積層構造による新規材料開発」に資 するものとなる。

本年度は、実際の強磁場中での共鳴測定の準備実 験として、分子吸着した絶縁体基板上への金属超薄 膜のエピタキシャル成長を試みた。一般に、絶縁体 上における数原子層程度の金属超薄膜の二次元成長 は非常に困難であり、これが電気伝導特性等を調べ ることを難しくしている。一方、MgO 基板上への Fe 超薄膜の作製において、微量の CO ガスを導入し ながら成膜すると結晶品質が向上するという報告が ある[1]。そこで、本研究ではこのような基板表面へ の分子の吸着が超薄膜の成長機構に及ぼす影響に着 目し、分子を吸着させた MgO (001)表面への Fe 超薄 膜のエピタキシャル成長を試みた。また、Fe 単結晶 超薄膜の低磁場における FMR 測定も行い、今後の 強磁場における共鳴実験の予備的検討を行った。

2. 実験

2-1. 分子吸着した絶縁体基板上への金属超薄膜エ ピタキシャル成長

MgO (001)基板上に膜厚 5 nm の MgO バッファ層 をエピタキシャル成長させた。その後、無吸着の清 浄表面、CO 吸着表面および H₂O 吸着表面の 3 つの 試料表面上に Fe を 0.3 nm 成長した。成長には分子 線エピタキシ法を用いた。Fe 超薄膜の表面を原子間 力顕微鏡(AFM)で観察し、表面平坦性の評価を行っ た。

2-2. Fe 単結晶超薄膜の低磁場強磁性共鳴

MgO(001)基板上に MgO シード層(20 nm)、Fe シー ド層(8 nm)、MgO バッファ層(0.7 nm)、Fe 超薄膜の 順に成膜した。フォトリソグラフィーを用いてコプ レーナウェーブガイド(ガイド幅 100 μm)を作製し、 その信号線上に試料を置いて外部磁界を印加するこ とにより FMR の測定を行った。この際、ネットワー クアナライザから高周波電流をウェーブガイドに導 入し、反射波を測定してその差分を FMR シグナル とした。

3. 実験結果

3-1. 分子吸着した絶縁体基板上への金属超薄膜エ ピタキシャル成長

図1にそれぞれの MgO 表面に成長した Fe 超薄膜 表面の AFM による観察結果を示す。どの試料にお いても多数のボイドが観察された。MgO 基板表面の ボイドが Fe 表面においても残存しているためと考 えられる。これらの AFM 像を比較すると、CO 吸着 MgO 表面に成長した Fe 表面においてボイドが最も 多く明瞭に観察されており、CO 分子吸着によって Fe 原子のボイド部への堆積が阻害された可能性が ある。しかしながら、表面の平均粗さを示す Ra 値 は分子無吸着試料では 1.0 nm、CO 吸着試料では 0.89 nm、H₂O 吸着試料では 0.72 nm となっており、H₂O 分子吸着によって表面の平坦性が向上したことがわ かった。Fe 超薄膜表面の RHEED 像では、MgO 表面 のストリークパターンと Fe 表面のスポットパター ンが重畳している様子が観察されたが、H₂O 吸着試 料においては Fe 表面のハローパターンが観察され



Fig. 1 AFM images of ultrathin Fe film surfaces. (a)No-adsorbed sample, (b) H_2O -adsorbed sample, and (c) CO-adsorbed sample.

た。これは、Fe 超薄膜が十分にエピタキシャル成長 せずに一部アモルファス状になっているためと考え られる。これらの結果から、MgO 表面へのガス分子 吸着によって Fe 超薄膜の成長の形態が変化するこ とが確認された。特に、H₂O 分子の吸着により、Fe 超薄膜の平坦性が著しく向上した。今後はさらに平 坦な Fe 超薄膜を得るため、MgO 表面への分子吸着 量の制御や、より平坦性を向上させる吸着種の探査 が必要である。

3-2. Fe 単結晶超薄膜の低磁場強磁性共鳴

図 2 に膜厚 20 nm の Fe 薄膜の FMR スペクトルの 印加磁場依存性を示す。磁場の印加に従って周波数 がシフトする共鳴ピークが観測され、その強度は膜 厚の増加に比例することが確認された。また、膜厚 3 nm の Fe ナノドットでは共鳴ピークが観測された のに対し、Fe 連続膜では明確な共鳴ピークが観測さ れなかった。蒸着量が等しく構造のみが異なる2種 類の Fe 薄膜において、異なる共鳴現象が観測された のは非常に興味深い結果である。Feの形状磁気異方 性が両者で異なることがその起源として考えられる が、詳細は明らかでない。Fe ナノ粒子の整列性が観 測される膜厚0.3 nmの試料についても測定を行った が、明確な共鳴ピークは観測されなかった。これは、 Fe のスピン数が本手法の検出限界以下であること を示唆している。今後、これを観測するためには、 試料をウェーブガイドの中に埋め込むなどの感度を 向上させる工夫が必要であると考えられる。



Fig. 2 Ferromagnetic resonance spectra of an Fe film with a thickness of 20 nm. Triangles indicate resonant peak points.

4. まとめ

強磁場中での共鳴測定の準備実験として、分子吸着した絶縁体基板上への金属超薄膜のエピタキシャル成長を試みた結果、MgO表面へのガス分子吸着によって Fe 超薄膜の成長の形態が変化することが確認された。特に、H₂O分子の吸着はFe 超薄膜の平坦性を向上させることが分かった。また、Fe 単結晶薄膜の低磁場での強磁性共鳴を、コプレーナウェーブガイドを用いて観測することに成功した。

参考文献

 M. Lust, A. Priebe, G. Fahsold, and A. Pucci, Surf. Interface Anal. 33, 487 (2002).