

4B01

深さ分解 XMCD による単層グラフェン/Ni 薄膜の磁気状態分光

(原子力機構・先端基礎セ) ○松本吉弘, 圓谷志郎, 大伴真名歩, アブラモフパベル, 檜本洋, 境誠司

Depth-Resolved XMCD Spectroscopy of Single-Layer Graphene / Ni Thin Film

(ASRC JAEA) ○Yoshihiro Matsumoto, Shiro Entani, Manabu Ohtomo, Pavel V. Avramov,
Hiroshi Naramoto, Seiji Sakai

【序】 グラフェンは長いスピン拡散長や高いキャリア移動度など電子スピン情報の伝達に優れた性質を数多く有することから、次世代スピントロニクススの基盤材料として有望視されている。グラフェンをスピン素子に応用するためには、スピン偏極した電子を効率よくグラフェン中に移動できるスピン注入源の開発が課題となる。有力なスピン注入源の一つが、磁性金属をグラフェン表面に直に接合させた電極構造であるが、これまでに報告されているグラフェンへのスピン注入効率には大きなばらつきがあり、期待される十分な物性は得られていない。グラフェン/FM 界面がスピフィルターとして働くことが理論的に予測されている反面、界面で生じる強い相互作用によりスピン注入が阻害されることも指摘されている。以上の観点から、グラフェン/FM 界面の電子・磁気状態の理解がグラフェンへのスピン注入効率の向上に特に重要と考えられる。本研究ではサブ・ナノメートルオーダーの深さ分解能を持つ X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定法^[1]を用いて、Ni(111)薄膜上に単層グラフェン (SLG) をエピタキシャル成長させた接合体の界面状態について分光解析を行った。

【実験】 SLG/Ni(111)試料は超高真空化学気相成長 (UHV-CVD) 法^[2]を用いて作成した。まず、原子レベルで平坦なサファイア ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) 基板上に膜厚 30nm の Ni(111)薄膜をエピタキシャル成長した後、短時間のポストアニールを行うことで Ni(111)表面を得た。次に、約 650 度に保持した Ni(111)薄膜に超高真空下 ($<10^{-6}\text{Pa}$) でベンゼンガス (C_6H_6) を 100 ラングミュアだけ曝露し、Ni(111)表面全体を覆うように SLG をエピタキシャル成長した。SLG/Ni(111)試料の結晶性と組成を、in-situ 条件で低速電子線回折 (RHEED) 測定とオージェ電子分光 (AES) 測定により評価した後、分光測定チャンバーへ輸送した。分光測定は高エネルギー光子ファクトリー (KEK-PF) 内のビームライン BL-7A において、全て室温条件下で行った。XMCD 測定は Ni(111)薄膜の面内容易磁化軸方向にパルス磁場 ($H = \pm 1600\text{Oe}$, $t < 1\text{s}$) を加えて Ni 薄膜を磁化させた後、同薄膜の残留磁化で行った。

【結果と考察】 円偏光 X 線 (偏光度 $P_c=0.80$) の入射角 (α) が異なる条件で測定した Ni $L_{2,3}$ 端励起 X 線吸収スペクトル (XAS) と XMCD スペクトルを図 1 に示す。図中の青線は主に界面に近い Ni 原子層からの、赤線は界面から離れた場所も含む Ni 薄膜全体からのスペクトルにそれぞれ対応する。また、円偏光 X 線の入射角が浅い条件 ($\alpha = 30^\circ$) で観測された XMCD スペクトルは面内方向の磁気モーメントの大きさを、入射角が深い条件 ($\alpha = 60^\circ$) で観測された XMCD スペクトルは面直方向の磁気モーメントの大きさを強く反映する。上段の XAS スペクトルについて、赤線と青線のスペクトル形状は良く一致しており、X 線の入射角に対する依存性も殆ど観測されない。これは界面近傍の Ni 原子層においても、Ni の結晶性が保たれていることを表している。一方で XMCD スペクトルについては、X 線の入射角を変えることで信号強

度に違いが生じていることが分かる。これは、Ni(111)薄膜の磁気構造が界面からの距離に応じて変化していることを示している。平均検出深さ(λ_p)が異なる XMCD スペクトルの積分強度と磁気総和則^[3,4]を用いて、X 線の入射角方向の有効スピン磁気モーメント($M_{spin}^{eff}(\alpha)$)と軌道磁気モーメント($M_{orb}(\alpha)$)を算出したところ、 λ_p に対して図2の様な変化が観測された。 $\lambda_p > 1\text{nm}$ の領域では、X 線の入射角が深い条件($\alpha = 60^\circ$)に比べ、浅い条件($\alpha = 30^\circ$)で得られた磁気モーメントの値が大きくなっている。 $\lambda_p < 1\text{nm}$ の領域では、X 線の入射角が深い条件($\alpha = 60^\circ$)で増加傾向を示す反面、浅い条件($\alpha = 30^\circ$)では減少傾向を示し、界面に近い場所では相対強度の逆転が生じている。ここで全磁気モーメントの大きさを M_{total} 、面内からの角度を γ と定義すると以下の式が成り立つ。

$$M'_{total}(\alpha) = M_{total} \cos(\alpha - \gamma)$$

$$M'_{total}(\alpha) = M_{spin}^{eff}(\alpha) + M_{orb}(\alpha)$$

ここで $M'_{total}(\alpha)$ は X 線の入射角方向への投影成分である。上述式と図2の各磁気モーメントの大きさから、界面に近い場所($\lambda_p = 0.4\text{nm}$)では $M_{total} = 0.55\mu_B$, $\gamma = 87^\circ$ 、界面から遠い場所($\lambda_p = 1.8\text{nm}$)では $M_{total} = 0.66\mu_B$, $\gamma = 2.9^\circ$ と見積もられた。 $\lambda_p = 1.8\text{nm}$ での M_{total} の値は fcc-Ni の値($M_{total} = 0.68\mu_B$)と良く一致している。これらの結果から、SLG/Ni(111)薄膜では、SLG/Ni 界面近傍にある Ni 原子層で容易磁化方向が面内から面直方向に変化していること(垂直磁気異方性(PMA)の発現)、及び、界面から数原子層の範囲にある Ni 原子の磁気モーメントが2割程度減少していることが明らかになった^[5]。従来のスピン注入源では、このような界面特有の磁気状態は考慮されておらず、スピン注入を妨げる原因になっていた可能性が考えられる。今後、グラフェンへのスピン注入効率は PMA を示す磁性電極を用いることで大幅に改善されることが期待される。

【参考文献】

[1]K. Amemiya, *PCCP*, **14** (2012) 10477. [2]S. Entani *et al.*, *JAP*, **111** (2012) 064324. [3]B. T. Thole *et al.*, *PRL*, **68** (1992) 1943. [4]P. Carra *et al.*, *PRL*, **70** (1993) 694. [5]Y. Matsumoto *et al.*, *JMCC*, *in press*.

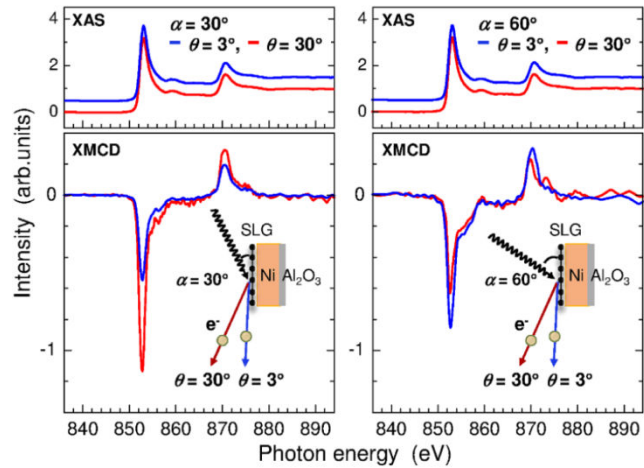


図1 SLG/Ni(111)試料の深さ分解XMCDスペクトル。図中に青線/赤線で描かれた XAS・XMCD スペクトルは、試料表面から小さな角度/大きな角度で放出された電子を測定して得られたスペクトルで、界面から浅い/深い領域にそれぞれ対応する。

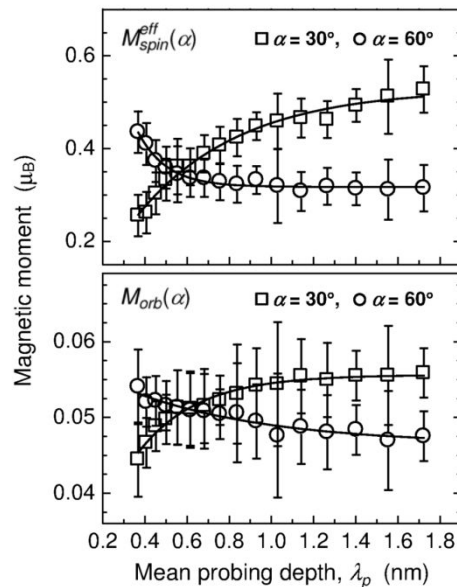


図2 有効スピン磁気モーメント(M_{spin}^{eff})と軌道磁気モーメント(M_{orb})の平均検出深さ(λ_p)に対する依存性