

# 「垂直磁化膜の磁気コンプトンプロファイルの異方性」

群馬大学工学部電気電子工学科 桜井 浩

## はじめに

これまで多くの磁気記録に利用されてきた水平磁気記録方式は100Gbit/inch<sup>2</sup>程度が限界とされている。そのため、2004年から2005年にかけて垂直磁気記録方式の製品が次々と発表された。今後磁気記録の主流になると予想され、世界の市場規模は2010年に3兆円から6兆円程度と予想されている(日本のシェアは30%程度)[1]。これまでCoCrTaPt-SiO<sub>2</sub>グラニューラー、Pd/Coなど人工格子薄膜、TbFeCo薄膜、SmCo薄膜などの研究が報告されている。しかし、実用的視点からの材料開発の研究が先行する一方、垂直磁気異方性の起源については今だ明確でないことが多い。そこで、本研究では、波動関数の異方性に着目し、磁気異方性との関連を調べることを目的とする。

コンプトンプロファイル $J(p_z)$ は以下の式で表される。

$$J(p_z) = \int (n(\mathbf{P})) d p_x d p_y, \quad n(\mathbf{P}) = |\psi(\mathbf{P})|^2$$

ここで、 $\mathbf{P}=(p_x, p_y, p_z)$ は固体中の電子の運動量、 $n(\mathbf{P})$ は運動量空間の電荷密度、 $\psi(\mathbf{P})$ 、運動量空間の多体波動関数を表す。コンプトンプロファイルは運動量空間の電荷密度の2重積分であるが、 $p_x$ 方向を変えて測定すれば医学応用におけるtomographyと同様、運動量空間における電荷密度の「形状」が観測できる。

高エネルギー円偏光X線を利用すると、以下の式で表される磁気コンプトンプロファイル $J_{mag}(p_z)$ が観測される。

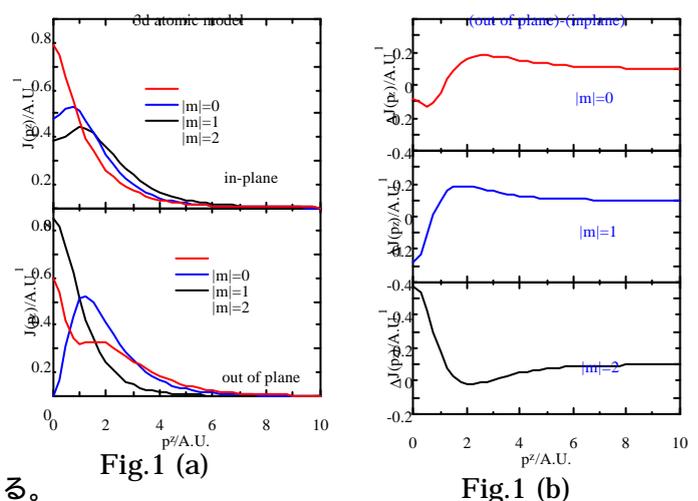
$$J_{mag}(p_z) = \int (n_{maj}(\mathbf{P}) - n_{min}(\mathbf{P})) d p_x d p_y$$

ここで、 $maj$ はマジョリティースピン、 $min$ はマイノリティースピンを表す。したがって、磁気コンプトンプロファイルはアップスピンの電荷密度とダウンスピンの電荷密度の差を観測する。磁気コンプトンプロファイルの異方性の測定によって運動量空間におけるスピンの依存した波動関数の「形状」が観測できる[2]。

以上から磁気コンプトンプロファイルの異方性を観測することによって、磁性薄膜の波動関数の異方性が観測できることがわかるであろう。しかし、これまで磁気コンプトン散乱の実験では60keVから180keVの高エネルギーX線を利用するため、薄膜の測定は困難とみなされてきた。しかし、最近我々は、わずか1 $\mu$ mの厚さであるPd/Co人工格子の磁気コンプトンプロファイルの異方性測定が可能であることを実証した[3]。そこで、以下いくつかの垂直磁気異方性を有する磁性薄膜の磁気コンプトンプロファイルの測定例を報告したい。

## 1. コンプトンプロファイルのモデル計算

人工格子のような一軸結晶場(円筒対称)に、3d電子は磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ の3つの状態に分裂する。(量子化軸を膜面垂直(out-of-plane)方向にとる) Fig.1(a)にHartree-Fock近似によるatomicな状態を仮定してこれらの各磁気量子数に対応するコンプトンプロファイルを計算した結果を示す。ここで、out-of-planeは一軸結晶場の軸方向を $p_z$ 軸とした場合であり、in-planeは一軸結晶場の軸方向と垂直方向を $p_z$ 軸とした場合である。Fig.1(b)にout-of-planeとin-planeの場合の差(異方性)を示す。磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ によってコンプトンプロファイルが特徴的異方性を示すことがわかる。



## 2. Pd/Co人工格子の磁気コンプトンプロファイル[3]

Pd/Co人工格子はCoが数原子層以下の場合、Pd層が厚くなるにつれて垂直磁気異方性を示すことが知られている[4]。Fig2(a)にPd(xnm)/Co(0.8nm)人工格子( $x=0.8, 1.6, 4.0$ )の磁気コンプトンプロファイルをFig2(b)にその異方性を示す。垂直磁気異方性エネルギーが正の時垂直磁化膜であり、 $x=1.6, 4.0$ の場合

が該当する。(垂直磁気異方性エネルギー  $-1.30\text{Merg/cc}$  ( $x=0.8$ )、 $1.45\text{Merg/cc}$  ( $x=1.6$ )、 $2.89\text{Merg/cc}$  ( $x=4.0\text{nm}$ )) Pd/Co 人工格子は Co のみならず Pd4d 電子も磁気モーメントを有することが知られている[5]。したがって、異方性の起源は Co3d 電子または Pd4d 電子と考えられる。そこで Fig2(b)と同様なモデル計算を行い、Pd4d の異方性の寄与を検討した結果が Fig4 である。Pd4d の異方性の寄与は無視できることがわかる。以上から、Co3d の異方性の寄与のみを考慮して fitting によって磁気量子数 $|m|=0,1,2$  の寄与を分離した結果、 $x=4.0\text{nm}$  垂直磁化膜では $|m|=2$  の寄与が大きいことわかり、これらは Kyuno らによる理論計算[6]と一致する。一方、 $x=1.6$  の垂直磁化膜では $|m|=1$  の寄与が大きいことがわかった。以上から垂直磁気異方性では $|m|=2$  のみならず $|m|=1$  の寄与もあることがわかった。

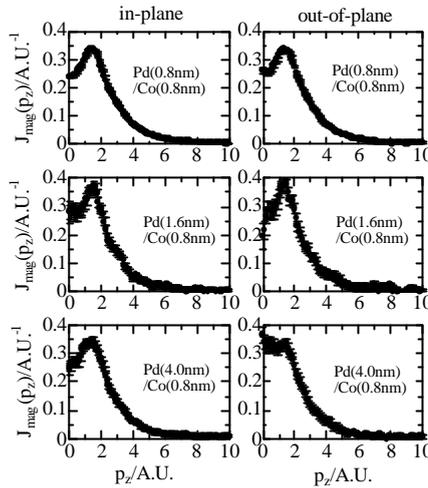


Fig.2 (a)

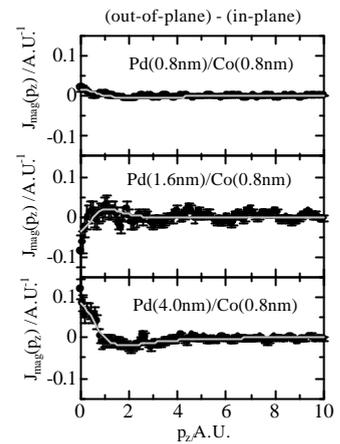


Fig.2 (b)

### 3. Pd/Fe 人工格子の磁気コンプトンプロファイル[7]

Pd/Fe 人工格子は Fe 層の厚さ 2 nm 以下で fcc 相を示し、Fe の磁気モーメントが  $2.7\mu_B$  に増大することが知られている[8]。また、垂直磁気異方性は有さず、FePd 合金は磁気異方性が小さい高磁率材料として知られている。Fig.3 に Pd(1.6nm)/Fe(xnm)人工格子 ( $x=0.8,1.6,4.0$ ) の磁気コンプトンプロファイルおよびその異方性を示す。Pd/Co 人工格子に比べて異方性が 20% 以下であり、波動関数の異方性が小さいことがわかる。以上のことから、垂直磁気異方性には 3d 電子の寄与が重要であることがわかる。また、磁気異方性が小さい(磁歪が小さい)材料が高透磁率をしめすことから、Pd/Fe 人工格子の場合は、波動関数の異方性が小さいため磁気異方性も小さく、そのため高透磁率示すことがわかった。Kyuno らによるバンド計算[6]によると、Pd/Co 人工格子、Pd/Fe 人工格子いずれの場合も majority スピンは Fermi レベル以下であるが、Pd/Co 人工格子の場合は minority スピンの状態密度のピークが Fermi レベルにあるため磁気異方性が大きく、Pd/Fe 人工格子の場合は minority スピンの状態密度の裾に Fermi レベルにあるため磁気異方性が小さくなることが指摘されている。

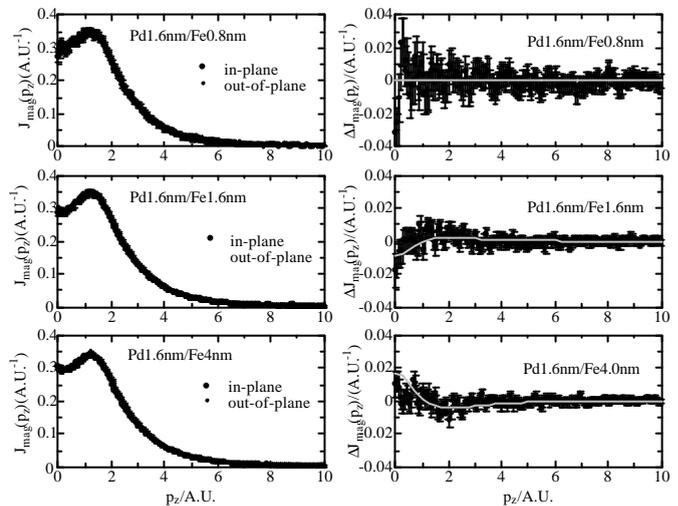


Fig.3 (a)

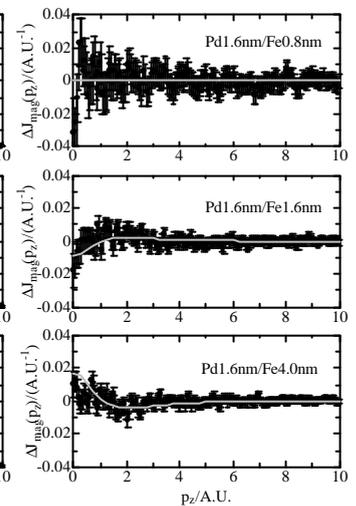


Fig.3 (b)

### 4. Pt/Fe 人工格子の磁気コンプトンプロファイル

Pt/Fe 人工格子は Fe が数原子層以下で fcc 構造を有し垂直磁気異方性を発現する[9]。さらに、低温では垂直磁気異方性から面内磁気異方性になることが知られている [9]。Pt(2nm)/Fe(xnm) ( $x=0.9,2.3$ ) における磁気コンプトンプロファイル測定した結果、その異方性が Fe 相の厚さに依存することがわかった。さらに、飽和磁化の Fe 層厚の依存性が線形であることから、Fe 層の磁気コンプトンプロファイルと Pt 層の磁気コンプトンプロファイルを分離した。Pt 層の磁気コンプトンプロファイルを Fig. 4(a)、Fe 層の磁気コンプトンプロファイルを Fig. 4(b)に示す。異方性は Pt 層より Fe 層で顕著である。Fe 層のプロファイルの

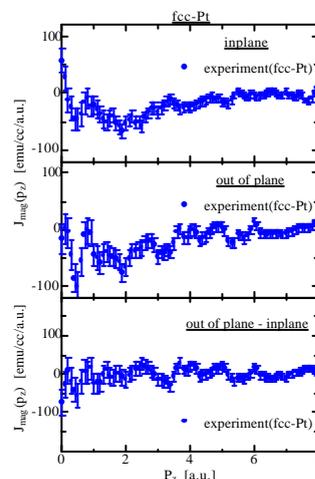


Fig.4 (a)

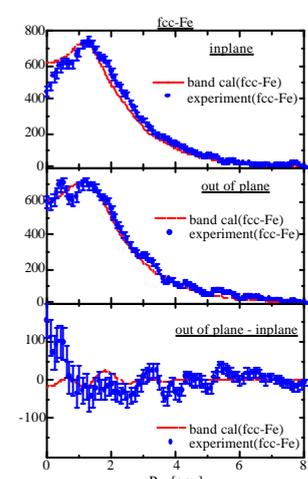


Fig.4 (b)

異方性は、垂直磁気異方性を有する Pd(4nm)/Co(0.8nm)人工格子の特徴と類似しており、Fe3d 電子の磁気量子数  $|m|=2$  の寄与に起因すると考えられる。

また、Pt(2nm)/Fe(0.9nm)における in-plane 配置の磁気コンプトンプロファイルの温度変化を測定した結果、 $p_z < 2$  a.u. に温度変化が観測されているのがわかった(Fig. 5)。Fig1(a)におけるモデル計算との比較から、in-plane において Fe3d 電子の磁気量子数  $|m|=0$  の寄与の増大に起因すると考えられ、これが低温における面内磁気異方性の起源と考えられる。今後、磁気コンプトンプロファイルの異方性の温度変化によって明確になると期待される。

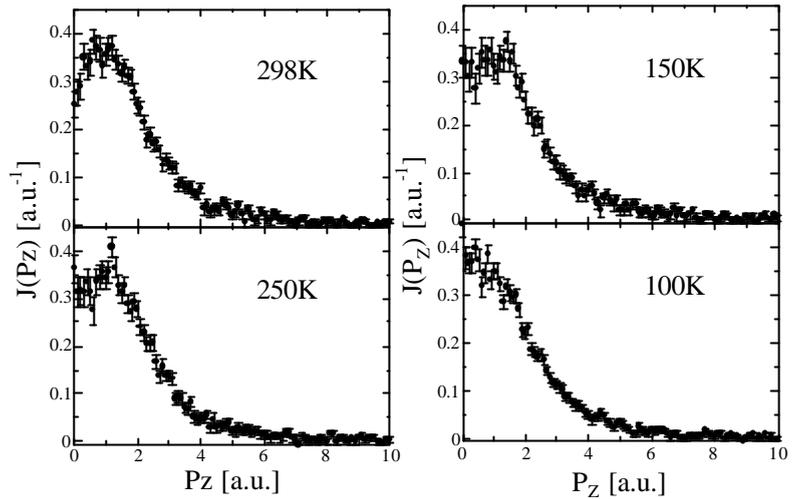


Fig.5

### 5. TbFeCo アモルファス合金の磁気コンプトンプロファイル

TbFeCo アモルファス合金は既に光磁気記録媒体として広く普及しているが、近年熱アシスト型次世代垂直磁気記録メディアとしての研究が進められている。一方、製膜時のスパッタリングガス圧力によって同じ組成でも磁気異方性が異なるのはなぜか[10]、そもそも均一なアモルファスのはずなのになぜ垂直磁気異方性を有するのかなど研究が進められている[11,12,13]。Fig. 6 はほぼ同じ組成で異なるスパッタリングガス圧で製膜した試料の磁気コンプトンプロファイルとその異方性である (perpendicular anisotropy: Tb<sub>27</sub>Fe<sub>65</sub>Co<sub>8</sub>, Ar5mTorr, isotropic: Tb<sub>28</sub>Fe<sub>61</sub>Co<sub>11</sub>, Ar30mTorr) (磁気コンプトンプロファイル測定は室温)。

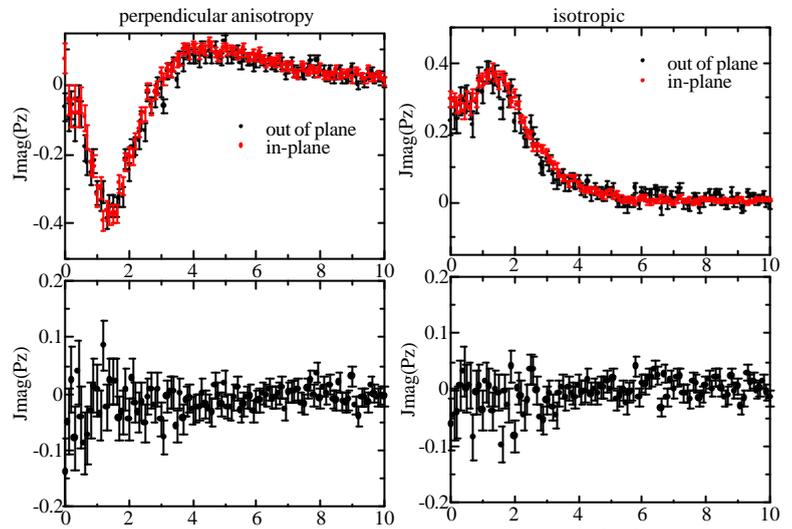


Fig.6 (a)

Fig.6 (b)

垂直磁化膜と等方的磁化膜ではプロファイルの形状が著しく異なっていることがわかる。一方、磁気コンプトンプロファイルの異方性はどちらも小さい。これらのことから、TbFeCo アモルファス合金では垂直磁気異方性に対する波動関数の異方性の寄与が小さいと考えられるが、数%程度の原子の規則配列が垂直磁気異方性に寄与するとの報告[11]もあり、わずかな結晶場の異方性を観測できなかった可能性もある。今後検討を続ける必要がある。

さらに、磁気コンプトンプロファイルと磁化測定を組み合わせ、Fe の磁気モーメントと Tb の磁気モーメントの寄与を分離した。TbFeCo アモルファス合金は aspero 磁性[12,13]を有するとする報告があるので、Tb の磁気モーメントを  $9\mu_B$ 、Fe-Co の平均磁気モーメントを TbFe<sub>2</sub> 中の Fe 磁気モーメント ( $-1.8\mu_B$ ) 程度[14]と考えて磁気モーメントの角度を見積もった。さらに磁化の温度変化から 10K における Tb の磁気モーメントと Fe-Co の平均磁気モーメントを求め、同様に各磁気モーメントの角度を求めた。結果を Table1 に示す。垂直磁気異方性を有する場合は Tb の磁気モーメントと Fe-Co の平均磁気モーメントはほぼ平行で、磁化は Tb 磁気モーメントが支配的である。等方的磁気特性の場合は Tb の磁気モーメントが比較的ランダムに分布し、磁化は Fe-Co の磁気モーメントが支配的となる。また、10K での磁気モーメントの角度を検討すると、垂直磁気異方性が增大するにつれて、Fe の磁気モーメントの角度はあまり変わらないが、Tb の磁気モーメントの角度が減少する傾向にある。この傾向は XMCD による測定結果[12,13]と一致する。

Table 1

	magnetic moment		cant angle	
	Tb/ $\mu_B$	Fe/ $\mu_B$	Tb/degree	Fe/degree
perpendicular anisotropy/R.T.	1.7	0.45	79	76
isotropic/R.T.	0.73	0.91	85	60
perpendicular anisotropy/10K	3.9	1.1	64	54
isotropic/10K	0.86	1.1	85	54

このように、磁性薄膜の磁気コンプトンプロファイルの測定技術はほぼ確立したと考えている。これは 10 年前には想像していなかったことであり、放射光施設の高度化に負うところが大きい。今後は汎用測定技術としての解析手法を確立していくことが必要であろう。

本研究は大田実氏（群馬大工院）、村山栄司氏（群馬大工院）、岡田遼氏（群馬大工）、伊藤文武名誉教授（電磁気デバイス研）、劉小晰助教授（信州大工）、櫻井吉晴博士（JASRI/SPring-8）、伊藤真義博士（JASRI/SPring-8）、小泉昭久博士（兵庫県立大理）、河田洋教授（KEK-PF）、安達弘通博士（KEK-PF）との共同研究です。ここに謝意を表します。

#### 参考文献

- [1] 第47回総合科学技術会議資料 中村（東北大通研）<http://www8.cao.go.jp/cstp/siryo/haihu47/siryo3.pdf>
- [2] A. Koizumi, S. Miyaki, Y. Kakutani, H. Koizumi, N. Hiraoka, K. Makoshi, N. Sakai, K. Hirota and Y. Murakami Phys. Rev. Lett. **86**, 5589 (2001).
- [3] M. Ota, H. Sakurai, F. Itoh, M. Itou and Y. Sakurai, J. Phys. Chem. Solids. **65**, 2065 (2004).
- [4] H. Nemoto, H. Nakagawa and Y. Hosoe, IEEE Trans. Mag. **39**, 2714 (2003)
- [5] H. Sakurai, F. Itoh, Y. Okabe, H. Oike and H. Hashimoto, J. Magn. Magn. Mater. **198-199**, 662 (1999).
- [6] K. Kyuno, J.-G. Ha, and R. Yamamoto, Phys. Rev. B **54**, 1092 (1996).
- [7] H. Sakurai, F. Itoh, M. Ota, H. Oike, K. Takan, X. Liu and H. Kawata, J. Magn. Magn. Mater. **286**, 410 (2005).
- [8] H. Mühlbauer, CH. Müller and G. Dumpich, J. Magn. Magn. Mater. 192(1999)423.
- [9] T. Katayama, Y. Suzuki, Y. Nishihara, T. Sugimoto and M. Hashimoto J. Appl. Phys. **69** (1991)5658.
- [10] M. Murakami and M. Birukawa, J. Appl. Phys. **95** (2004)7327.
- [11] V. G. Harris and T. Pokhil, Phys. Rev. Lett. **87** (2001)067207.
- [12] C. Bordel, S. Pizzini, J. Vogel, K. Mackay, J. Voiron, R. Galera, A. Fontaine, P. Auric, J. B. Goedkoop and N. B. Brookes, Phys. Rev. **B56** (1997)8149.
- [13] A. Agui, M. Mizumaki, T. Asahi, J. Sayama, K. Matsumoto, T. Morikawa, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Osaka and Y. Miura, Trans. Magn. Soc. Jpn. **4** (2004)326.
- [14] E. P. Wohlfarth, ed., Ferromagnetic Materials vol. 1 (North-Holland, 1980).