

XMCDによる磁性研究 —Ptを含む磁性体とPt L -吸収端XMCD—

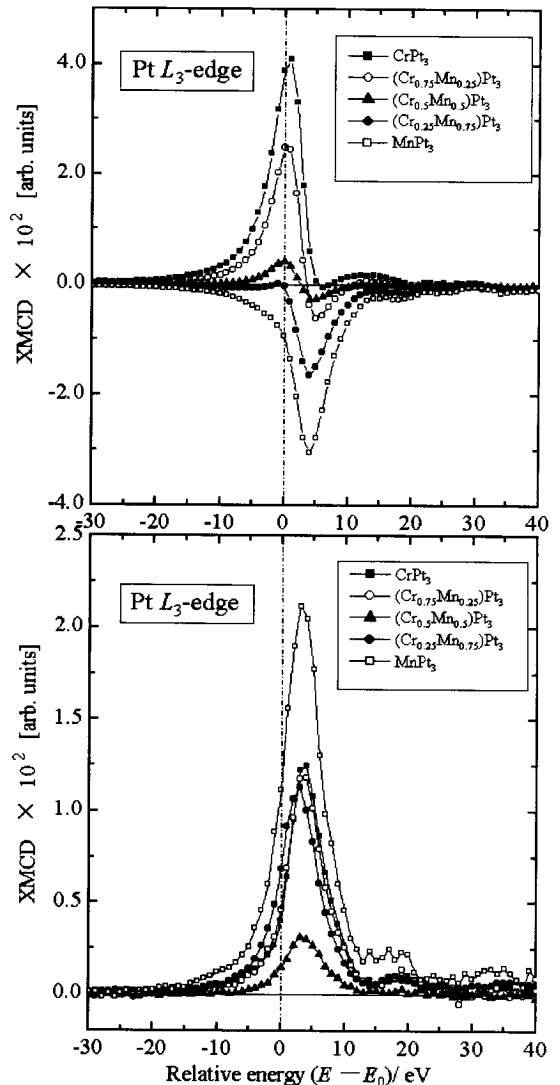
広島大学大学院 理学研究科 圓山 裕

次世代の高密度磁気記録媒体としてCoPtやFePt規則合金、CoCrPt合金の垂直磁化膜[1]が注目されている。それぞれMOやHDの素材として応用が考えられている。しかし、垂直磁気異方性の発現に対するPt原子の役割や長距離秩序と磁気状態の関係など不明の点が多い。一方、Pt L -吸収端のX線磁気円二色性 (XMCD) はPtの磁気状態の研究に大変有効な手法である。特に磁気光学総和則[2]による磁気モーメントに対するスピンと軌道成分の分離 (L - S 分離) は、磁性の理解に貴重な情報を提供することから、多くの研究者によって利用されてきた。しかし、総和則の適応限界や解析上の問題点も議論されている。特に、薄膜磁性体ではその対称性の破れから磁気双極子 $\langle T_z \rangle$ 項の取り扱いが重要となる。ここでは、擬二元(CrMn) Pt_3 合金系とCoPt合金薄膜でのPt L -吸収端XMCDの例を紹介する。

総和則の適応では、(i) X線吸収強度の見積りと、(ii) $5d$ ホール数の見積もりから曖昧さを除くのが難しい。(i)では、①arctangent曲線のB.G.を差引く、②AuのXANESを差引く方法が取られてきたが、各々に長所と短所がある。 L - S 分離では、(i)(ii)共に総和則の分母に効くので影響が大きい。バルクと薄膜試料のXANESの比較では、薄膜の方がwhite-line強度が大きい。従って、薄膜での $5d$ ホール数の増加が示唆されるが、定量的な見積もりは難しい。次に、 L - S 分離で問題になるのが、(iii)磁気双極子 $\langle T_z \rangle$ 項の取り扱いである。立方晶のバルク試料では $\langle T_z \rangle = 0$ と近似できるとして[3]、 L - S 分離に用いられている。しかし、薄膜では $\langle T_z \rangle \neq 0$ と考えるのが妥当である。第一原理に基づくバンド計算によって、薄膜で磁気双極子項は軌道成分と同程度 (あるいは一桁以上) の寄与を持つことが導かれているが[4]、未だ実験的には検証されていない。Ptを含む薄膜磁性体の話題の中で改めて議論が起こっている。

擬二元($\text{Cr}_{1-x}\text{Mn}_x$) Pt_3 合金

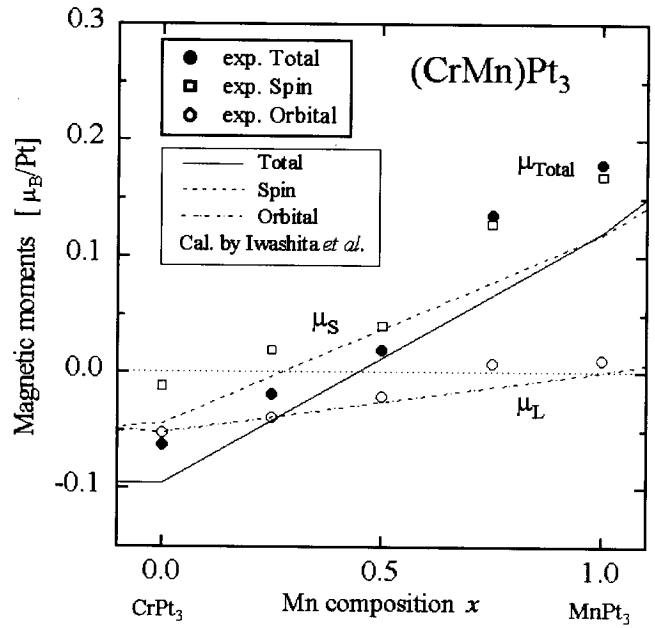
図1に示す様に、Pt L_3 -吸収端XMCDはCrPt₃側で正、MnPt₃側で負となり、中間組成で分散型を示す。一方、 L_2 -吸収端XMCDは組成に依らず常に正の符号だが、その強度は($\text{Cr}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}$)Pt₃で極端に減少する。これは、CrPt₃側で軌道成分が支配的な磁気状態から、MnPt₃側でスピンが支配的な状態への交差を意味している。総和則の適応では、(i) arctangentのB.G.を差引く X線吸収強度の見積りと、(ii) $5d$ ホール数 ($h_{5d} = 1$)、(iii) 磁気双極子項 $\langle T_z \rangle = 0$ を仮定した。得られた磁気モーメントの組成依存性を図2に示す。Mnの増加に伴って、軌道成分の減少とスピンの増加を見て取れる。線形の振る舞いは磁気モーメントに関する一種のVegard則と云える。 $x = 0.5$ 付近でスピンと軌道の成分が拮抗する。組成依存性について、実験結果とバンド計算[5]との一致は良い。特に、軌道磁気モーメントは定量的にも良く一致している。また擬二元($\text{Cr}_{1-x}\text{Mn}_x$) Pt_3 合金はCrPt₃とMnPt₃の混晶と見なせる。この系の磁気状態は、Cu₃Au-型規則構造を取ることによって、遷移金属原子(TM)が12個の



(図1) 擬二元($\text{Cr}_{1-x}\text{Mn}_x$) Pt_3 合金系のPt $L_{2,3}$ -吸収端XMCDスペクトル。

の最隣接Pt原子に囲まれて孤立化することと深く関係している。この局所構造によって、TMの原子的な電子状態、TM 3d-Pt 5d 混成の増強が誘起され、XMCDはTMの交換分裂の強さとPt 5d スピン軌道相互作用を反映すると考えられる。従って、TM-Pt合金における規則-不規則転移（結晶学的及び磁氣的な秩序状態）と磁性との関係が興味深い。

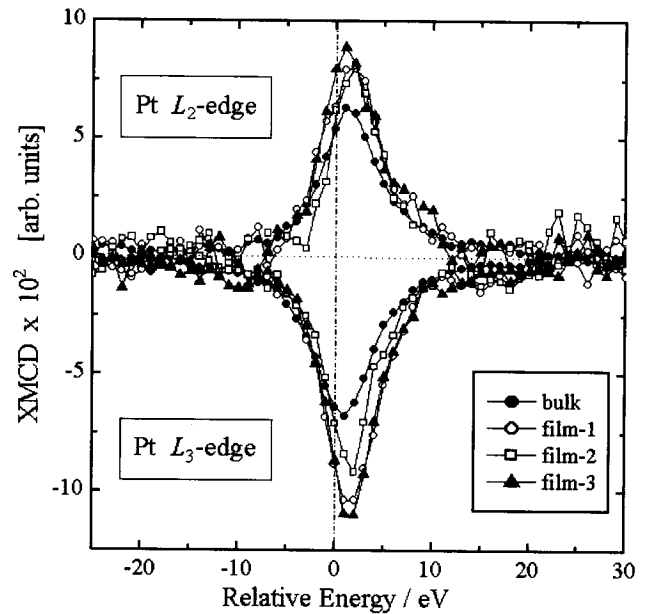
(図2) Ptの磁気モーメントの組成依存性。実験と理論の比較。



CoPt合金薄膜

次世代のMOやHDの素材としてPtを含む垂直磁化膜が有望視されているが、nmサイズの薄膜のPt磁気状態と垂直磁気異方性の発現との関係は未だ十分には理解されていない。その研究にPt L-吸収端XMCDは適しているが、薄膜では<Tz>項をどの様に取り扱えばよいのであろうか。実験では、SPring-8 BL39XUで薄膜の蛍光法XMCD測定が可能になった。最近、Co(15nm)/Pt(0.2nm)やCoCrPt(15nm)/Pt(2nm)の測定にも成功し、Pt-Cap層の分極が確かめられている。

図3にCoPt(100nm)合金薄膜（名大院工，岩田聡氏提供）とバルクのCoPt規則合金の比較を示す。薄膜試料はMgO基板上にMBE法によって作成された(100)面L1₀-型の垂直磁化膜(film-1)，(111)面L1₀-型の面内磁化膜(film-2)，(111)面L1₁-型の垂直磁化膜(film-3)である。薄膜のXMCD強度はバルクに較べて増大すると共に、L₃/L₂強度比の増強も著しい。これは薄膜での<Lz>/<Sz>の増加を意味しており、特に、film-3で顕著である。この結果は、<Lz>/<Sz>比と磁気異方性定数の間の相関を示唆している。L1₁-型CoPt合金での垂直磁化発現の要素に異方的な結晶構造が挙げられる。しかし、膜厚が100nmの薄膜ではバルクとの差は少ない。数nmの薄膜で<Lz>が相対的に大きい試料で、<Tz>項の寄与を評価するために、XMCDの角度依存性が有効と考えられる。



この結果は、<Lz>/<Sz>比と磁気異方性 (図3) CoPt合金薄膜のPt L_{2,3}-XMCD。

薄膜や量子細線，量子ドットなどnmサイズの試料のスピン電子状態が興味深い。特に、対称性や次元性との相関に新奇な磁性の観察が期待される。その様な試料で、Pt L-吸収端XMCDは相対的に大きな効果が期待される。

SPring-8利用研究課題（1999A0173, 2001B0244）の下で行われた研究成果である。

- [1] R. Wood, IEEE Trans. MAG. **36** (2000) 36.
- [2] P.Carra, B.T.Thole, M.Altarelli and X. Wang, Phys.Rev.Lett. **70** (1993) 694.
- [3] R. Wu, D. Wang and A.J.Freeman, Phys.Rev.Lett. **71** (1993) 3581;
- [4] R. Wu and A.J.Freeman, Phys.Rev.Lett. **73** (1994) 1994.
- [5] K. Iwashita, T. Oguchi, and T. Jo, Phys.Rev. **B54** (1996) 1159.