

垂直磁化膜の磁気コンプトンプロファイルの異方性

櫻井 浩 群馬大学工学研究科生産システム工学専攻 〒376-8515 群馬県桐生市天神町 1-5-1

要旨 垂直磁化膜の磁気コンプトン散乱を測定し、スピンの依存した運動量分布の異方性の観測に成功した。これらの実験から、貴金属/3d 遷移金属で構成される金属人工格子の垂直磁気異方性は 3d 遷移金属の 3d 電子の異方性の寄与に起因することがわかった。しかしながら、TbFeCo アモルファス合金は等方的な電子構造を示しており、TbFeCo アモルファス合金の垂直磁気異方性は磁気構造を間接的に反映することがわかった。

1. 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 100 Gbit/inch² 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⁾。

これまで貴金属/遷移金属人工格子薄膜（Pd/Co, Pt/Co, Pt/Fe など²⁻⁸⁾、TbFeCo アモルファス薄膜⁹⁻¹⁰⁾をはじめ、多くの磁性薄膜が垂直磁気記録材料として報告されている。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した。

2. 磁気コンプトンプロファイル

コンプトン散乱は光の粒子性を示す実験として、多くの量子力学の教科書に説明されている¹¹⁾。さらに、固体物理学の教科書には、コンプトン散乱の実験は電子運動量分布またはフェルミ面の測定手法として紹介されている¹²⁾。一方、円偏光した γ 線を用いて強磁性体のコンプトン散乱を測定すると磁気的な効果があることを N. Sakai と K. Ôno が 1976 年に実験的に報告し¹³⁾、スピンの依存した運動量分布（majority spin と minority spin の運動量分布の差）を測定している。スピンの依存したコンプトン効果を磁気コンプトン効果とよび、磁気コンプトン効果の測定から得られるスピンの依存した運動量分布を磁気コンプトンプロファイル(magnetic Compton profile: MCP)とよぶ。1980 年代になって放射光施設が発展して高強度の円偏光 X 線が得られるようになり、金属、合金の磁気コンプトンプロファイルの測定の報告が増えている¹⁴⁾。

磁気コンプトン効果は上述のようなスピンの依存した現

象であるが、その散乱断面積の導出は相対論的量子電磁学の計算になり、その計算過程からは現象の物理的内容が理解しにくい。X 線のエネルギーが電子の静止質量エネルギーに比べて小さい場合は、非相対論的なハミルトニアンに相対論的補正項を追加して摂動計算によって散乱断面積を求めるほうがなじみやすい。そこで、電磁場のもとにある電子のハミルトニアンを m^{-2} の項まで考慮してかいてみると¹⁵⁾

$$H = \sum_j \frac{1}{2m} \left(\mathbf{p}_j - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \right)^2 + \sum_j V(r_{ij}) - \frac{e\hbar}{mc} \sum_j \mathbf{s}_j \cdot \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) - \frac{e\hbar}{2(mc)^2} \sum_j \mathbf{s}_j \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_j) \times \left(\mathbf{p}_j - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \right) \quad (1)$$

と表される。ここで、 m , e は電子の質量と電荷、 \mathbf{p} はその運動量、 \mathbf{s} は電子スピン、 \mathbf{E} は電磁場の電気ベクトル、 V , \mathbf{A} は電磁場のスカラーポテンシャルとベクトルポテンシャル、 c は光速である。第 3 項、第 4 項がディラック方程式に基づく補正項である。第 3 項、第 4 項からスピンの依存する散乱があることがわかる。インパルス近似を考慮して散乱断面積を計算する。この過程は複雑であるので結果だけ記述すると^{14,16)},

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_2} = r_0^2 \frac{\omega_2}{\omega_1} \left((\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \hat{\mathbf{e}}_2^*)^2 \iint (\rho_{maj} + \rho_{min}) dp_x dp_y + 2 \frac{\hbar\omega_1}{mc^2} (\text{Im} [(\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \hat{\mathbf{e}}_2^*)^* B_z]) \iint (\rho_{maj} - \rho_{min}) dp_x dp_y \right) \quad (2)$$

となる。ただし、

$$\mathbf{B} = (\hat{\mathbf{e}}_2^* \times \hat{\mathbf{e}}_1) + (\hat{\mathbf{k}}_2 \times \hat{\mathbf{e}}_2^*) (\hat{\mathbf{k}}_2 \cdot \hat{\mathbf{e}}_1) - (\hat{\mathbf{k}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_1^*) (\hat{\mathbf{k}}_1 \cdot \hat{\mathbf{e}}_2^*) - (\hat{\mathbf{k}}_2 \times \hat{\mathbf{e}}_2^*) \times (\hat{\mathbf{k}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_1) \quad (3)$$

である。ここで、 $\hbar\omega_1, \hat{\mathbf{k}}_1, \hat{\mathbf{e}}_1$ はそれぞれ入射 X 線のエネルギー、入射 X 線方向の単位ベクトル、入射 X 線の電場ベクトルを表し、 $\hbar\omega_2, \hat{\mathbf{k}}_2, \hat{\mathbf{e}}_2$ は散乱 X 線のそれらを表す。また、 r_0 は古典的電子半径を表す。ここで、 $\rho_{\text{maj}}(\mathbf{p})$ ($\rho_{\text{min}}(\mathbf{p})$) は majority spin (minority spin) の運動量密度である。(2)式の第 2 項にあらわれる

$$J_{\text{mag}}(p_z) = \iint (\rho_{\text{maj}} - \rho_{\text{min}}) dp_x dp_y \quad (4)$$

が磁気コンプトンプロファイルである。(2)式の第 2 項の電場ベクトルに虚数を含んでいれば、すなわち円偏光であれば磁気コンプトンプロファイルが測定できることがわかる。さらに系が一電子状態の波動関数 $\Psi_{\sigma i}(\mathbf{r})$ ($\sigma = \text{maj}$ (min) は majority spin (minority spin) を表す。) で記述される独立粒子で構成されていると考えると、majority spin の (minority spin) 運動量密度 $\rho_{\text{maj}}(\mathbf{p})$ ($\rho_{\text{min}}(\mathbf{p})$) は次のように表すことができる^{14,16,17}。

$$\rho_{\sigma}(\mathbf{p}) = \sum_i^{\text{occ}} |\chi_{\sigma i}(\mathbf{p})|^2 \quad (5)$$

$$\chi_{\sigma i}(\mathbf{p}) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi\hbar}} \right)^3 \int \Psi_{\sigma i}(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{i\mathbf{p}\mathbf{r}}{\hbar}\right) d\mathbf{r} \quad (6)$$

以上から、(5)式の運動量密度は一電子状態の和として表すことができ、したがって、その 2 重積分である(4)式の磁気コンプトンプロファイルも一電子状態の和として表すことができる。詳細は解説を参照されたい^{14,18}。

以上から磁気コンプトンプロファイルの測定は 2 つの特徴を有する。

- ① (4)式で表されるように、磁気コンプトンプロファイルは 2 重積分であるため、ある p_z におけるスピンの依存した運動量密度の「断面積」を観測する。 p_z 方向を変えて測定すれば、医学における tomography と同様、スピンの依存した運動量密度の「形状」が観測できる。これは(5)、(6)式で表されるように運動量空間の波動関数の形状を反映している。
- ② 磁気コンプトンプロファイルは一電子状態の和である。したがって、後で述べるように、一軸性結晶場における 3d 電子の各状態のように特徴的な運動量分布を有する場合は、あらかじめモデル計算によって理論的運動量分布を求めておけば、fitting による解析から各電子状態を分離することができる。同様に希土類金属における 4f 電子と 3d 遷移金属における 3d 電子の運動量分布のように高運動量成分の形状が異なっている場合も、あらかじめモデル計算によって理論的運動量分布を求めておけば fitting による解析から元素選択的なスピン磁気モーメントを求めることができる。原子状態の各元素、各軌道のモデル計算はデータベー

ブル¹⁹が作成されている。

以上から磁気コンプトンプロファイルは磁性薄膜の波動関数の異方性の観測や元素選択的なスピン磁気モーメントの観測に有効であ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 60 keV から 180 keV 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 μm の厚さである Pd/Co 人工格子 (実際には 4 回折りたたんで有効厚さを 16 μm とした) 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^{20,21}。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。

3. 磁気コンプトンプロファイルの測定

磁気コンプトンプロファイルの測定システムは、レイアウトが簡単であるということが大きな特徴である。基本的には磁場発生装置とコンプトン散乱 X 線スペクトルを測定できる検出器があればよい。回折線を測定するわけではないので、試料、散乱ベクトル、磁場の 3 者の関係は大事であるが、厳密にあわせる必要はない。結晶試料でもアモルファス試料でも測定可能である。高エネルギー X 線を利用するので表面の寄与は無視することができる。ただし、前述したように、入射 X 線は単色でかつ円偏光である必要がある。そのため、放射光施設の利用が必要である。そこで、実験は SPring-8-BL08W および KEK-PF-ARNE1A1 で行った。施設としての性能はどちらのビームラインでも十分測定可能である。ユーザーインターフェースを考慮したユーティリティ、ビームラインのスペックなどで比較すると、例えば SPring-8-BL08W では 3 days 程度で行っている実験を KEK-PF-ARNE1A1 では 10 days 程度で行っている。今後のユーザーの広がり前提に SPring-8-BL08W のスペック²²)を中心に説明する。

実験配置の概略を Fig. 1 に示す。モノクロメーター Si (620) で 174 keV に単色化された入射 X 線 (入射 X 線の円偏光度 0.76) はスリットで整形され、入射 X 線強度を測定する I_0 モニターを通り、10 素子の Ge 半導体検出器の中心の穴を通り試料で散乱する。散乱角 178° でコンプトン散乱した X 線は 10 素子の Ge 半導体検出器によって検出され、エネルギースペクトルが測定される。分解能は

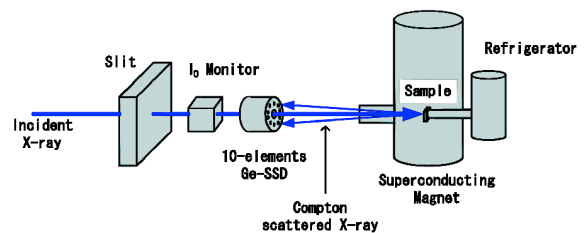


Fig. 1 Schematic diagrams of the experimental set-up.

Ge 半導体検出器で決まり0.43 a.u. 程度である。試料は超伝導磁石中にあり、+2.5 Tあるいは-2.5 Tの磁場がかけている。また、散乱ベクトル (p_z 方向) と磁場の方向は平行である。

+2.5 Tの場合と-2.5 Tの場合のコンプトン散乱 X 線のスペクトルを測定し、差を求めれば磁気コンプトン散乱に起因する散乱 X 線のスペクトルが得られる。このスペクトルを半導体検出器の検出効率のエネルギー依存性、試料の吸収補正、(磁気) コンプトン散乱の散乱断面積補正、エネルギースペクトルの電子の運動量への換算などのデータ補正を行うと(4)式で表される磁気コンプトンプロファイルが得られる。

散乱ベクトル (p_z 方向) と人工格子の積層方向が平行すなわち膜面垂直な方向である場合を「out-of-plane」の測定と名づける。一方、散乱ベクトル (p_z 方向) が膜面内の方向である場合を「in-plane」の測定と名づける。「out-of-plane」の測定と「in-plane」の測定の磁気コンプトンプロファイルの差から異方性を求める。測定温度はすべて室温であった。

薄膜のコンプトンプロファイル測定の場合、基板からの散乱のため S/N が悪くなると予想される。そこで、十分な機械的強度があり、電子濃度が小さい軽元素中心でできるだけ薄くかつ入手しやすい基板を検討した。その結果 4 μm 程度の厚さの PET フィルム (ポリエチレンテレフタレート: $(-\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{OCOC}_6\text{H}_4\text{CO}-)_n$) が基板として適当であると考えた。また、後述するように、12 μm の Al フォイル基板でも測定が可能であることがわかった。

薄膜の成膜には高周波スパッタ法を用いた。人工格子は厚さ 4 μm の PET フィルム上に作製した。TbFeCo アモルファス薄膜は厚さ 12 μm Al フォイル基板上に作製した。X 線回折によって人工格子の構造および人工周期を確認した。人工周期は中角散乱のサテライトピークを利用して求めた。

磁気コンプトン散乱の測定に際しては、散乱体の体積を稼ぐために薄膜を 4 回折りたたんだ。その結果、1 μm の薄膜の有効厚さは 16 μm となり、4 μm の PET 基板の有効厚さは 64 μm となった。

4. 薄膜の測定法の検討²⁰⁾

Fig. 2(a) は PET フィルム基板上に成膜した厚さ 1 μm の Fe 薄膜のコンプトンプロファイルを示す。103 keV 付近のピークがコンプトン散乱した X 線のスペクトルである。電子の運動量分布を反映して広がりをもっている。103 keV は静止した電子からのコンプトン散乱 X 線に相当するエネルギーである。Fe の磁気コンプトン効果は通常のコンプトン効果に対して 2% 程度とわずかである。しかし、スピンを反転させながらコンプトン散乱 X 線のスペクトルを測定し、差し引きすれば磁気コンプトン効果

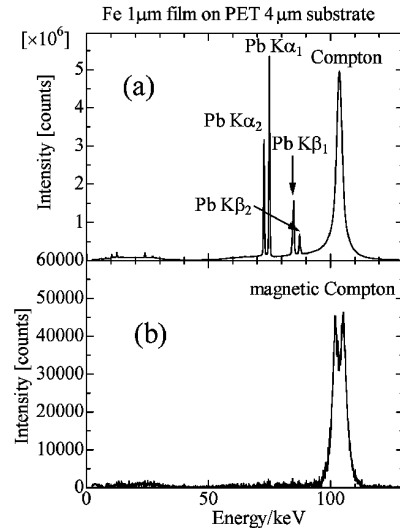


Fig. 2 (a) an energy spectrum of Compton scattered X-rays from an Fe 1 μm film on a polyethylene terephthalate substrate. (b) an energy spectrum of magnetic Compton scattered X-rays from the Fe 1 μm film.

のみが抽出される。基板は非磁性であるので、基板からのコンプトン散乱 X 線も差し引きされる。Fe 1 μm 薄膜からの磁気コンプトン散乱 X 線のスペクトルを Fig. 2(b) に示す。

Fig. 2(b) に示した磁気コンプトン散乱 X 線のスペクトルのデータを前述したようにデータ処理すると磁気コンプトンプロファイルが得られる。Fig. 3 に 10 μm の Fe フォイル (bulk Fe) の磁気コンプトンプロファイルと PET 基板上に成膜した 1 μm の Fe 薄膜の磁気コンプトンプロファイルを示す。両者は統計精度範囲内で一致しており、基板上の厚さ 1 μm 薄膜でも十分測定できることがわかった。

Table 1 は SPring-8-BL08W で測定した場合のコンプトンピークエネルギー ω_c における計数率 $C(\omega_c)$ 、マグネティックエフェクト $Me(\omega_c)$ 、Signal to Noise Ratio (S/N) = 20 に必要な測定時間 $t(\text{hr})$ を示す。ただし、

$$C(\omega_c) = (I_+(\omega_c) + I_-(\omega_c)) / t$$

$$Me(\omega_c) = \frac{I_+(\omega_c) - I_-(\omega_c)}{I_+(\omega_c) + I_-(\omega_c)}$$

$$S/N = \frac{(I_+(\omega_c) - I_-(\omega_c))}{(I_+(\omega_c) + I_-(\omega_c))^{1/2}} \quad (7)$$

である。ここで、 I_+ (I_-) は散乱ベクトルと磁場が平行 (反平行) な場合のコンプトン散乱 X 線強度を表す。厚さ 10 μm の Fe フォイル、PET 基板上に成膜した 1 μm の Fe 薄膜および Pd/Co 人工格子薄膜について、 $C(\omega_c)$ 、 $Me(\omega_c)$ 、 t を検討した。Pd/Co 人工格子薄膜については in-plane 測定および out-of-plane 測定で検討した。3d 遷移金属合金の場合、Fig. 3 に示すように、運動量 $p_z = 0$ 付近にくぼみがある。このくぼみは 3d-4s, p 軌道混成に起因し

Table I Effective thickness, count rates ($C(\omega_c)$), estimated measuring hours (t) for S/N=20, magnetic effects ($Me(\omega_c)$) at the Compton peak energy (103 keV as shown Fig. 2(a)). Film samples are folded to 4 times to increase the effective thickness

| Sample | effective thickness/ μm | applied field | Count rate, $C(\omega_c)$ /(count/hr) | Magnetic effect, $Me(\omega_c)$ (%) | Estimated measuring hours, t /hr |
|------------------------------|--|---------------|---------------------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|
| Fe plate 10 μm | Fe 10 μm | in-plane | 5.7×10^5 | 2.2 | 1.5 |
| Fe film 1 μm | Fe 16 μm PET 64 μm | in-plane | 1.0×10^7 | 0.65 | 1.0 |
| Co/Pd 1 μm | Co/Pd 16 μm PET 64 μm | in-plane | 1.1×10^7 | 0.26 | 5.4 |
| Co/Pd 1 μm | Co/Pd 16 μm PET 64 μm | out of plane | 5.5×10^5 | 0.23 | 137 |

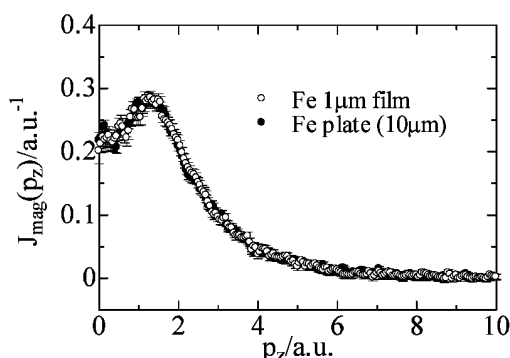


Fig. 3 A magnetic Compton profiles of an Fe 1 μm film and on a polyethylene terephthalate substrate and that of Fe 10 μm foil.

ており、3d 電子のスピンと 4s, p 電子のスピンが反並行に結合していることを示す^{23,24})。この構造は磁気コンプトンプロファイルのピークに対して10%程度であるので、少なくとも5%よりよい統計精度が必要であろう。したがって、S/Nは20以上が好ましい。Table Iをみると人工格子の場合でも最大で5日測定すればS/Nが20以上となり、運動量密度の異方性の測定が可能であることがわかる。その他の系を測定する場合には、薄膜の磁化の大きさ、基板と薄膜の厚さの比でも測定にかかる時間は変わるし、観測したい内容によってはS/Nは20以上である必要はない。最近の我々の実験では、多くても2日程度で結果がでることが多い。

5. 原子の 3d 電子の波動関数を用いた異方性のモデル計算

磁気コンプトンプロファイルの異方性の検討に当たり、モデル計算を検討した。人工格子は積層方向(膜面垂直(out-of-plane)方向)をz軸とする一軸性結晶場(円筒対称)にあると考えられる。この場合3d電子の状態はmを磁気量子数とすると $|m|=0, 1, 2$ の3つの状態に分裂する²⁵⁻²⁸)。Fig. 4は一軸性結晶場によって $|m|=0, 1, 2$ の3つの状態に分裂した各場合の電子の軌道の形、すなわち波

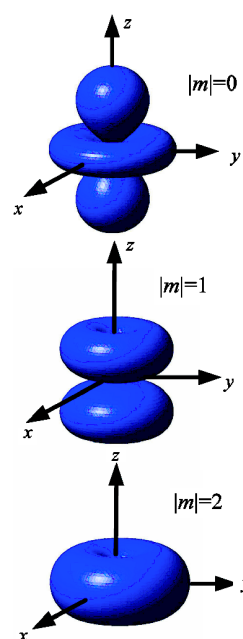


Fig. 4 Schematic diagram of electron densities with $|m|=0$, $|m|=1$ and $|m|=2$ states (m : magnetic quantum numbers) of 3d states.

動関数の形を示す。 $|m|=0$ では原点付近に構造がある。 $|m|=1$ では原点付近に波動関数の節が存在し、波動関数が0となる。 $|m|=2$ では「赤血球」のような形をしている。

今、実空間における原子の1電子波動関数 $\Psi(\mathbf{r})$ 、(6)式から求められる運動量空間の波動関数を $\chi(\mathbf{r})$ とすれば

$$\psi(\mathbf{r}) = f_{nl}(r) Y_{lm}(\theta, \varphi) \quad (8)$$

$$\chi(\mathbf{r}) = u_{nl}(p) Y_{lm}(\theta_p, \varphi_p) \quad (9)$$

と表される¹⁴)。ここで、 $f_{nl}(r)$ は実空間における波動関数の動径部分、 $u_{nl}(p)$ は運動量空間における波動関数の動径部分、 Y_{lm} は球面調和関数で実空間および運動量空間における波動関数の角度部分を表す。(8)、(9)から実空間の波動関数と運動量空間の波動関数の角度部分は同一である

ので、波動関数の「形」(対称性)は実空間と運動量空間で変わらないことがわかる。したがって、Fig. 4に描かれている3d電子の各磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ に対応する波動関数の「形」は、実空間においても運動量空間においても同様であると考えられる。コンプトンプロファイルは(4)式で表されるように、運動量密度(運動量空間の波動関数の絶対値の自乗)の二重積分である。したがって、3d電子の各磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ に対応するコンプトンプロファイルは、直感的にはFig. 4の波動関数の「形」の断面積と考えてよい。

例えば p_z 軸をFig. 4の z 軸にとってみる(out-of-plane)。波動関数の z 軸方向の広がりには $|m|=0, 1, 2$ の順に大きくなるので、コンプトンプロファイルの幅も $|m|=0, 1, 2$ の順に大きいであろう。また、 $|m|=0$ の場合、 $p_z=0$ 付近にコンプトンプロファイル構造があると期待される。また、 $|m|=1$ の場合、 $p_z=0$ で波動関数の節があるため、コンプトンプロファイルは0となる。一方、 $|m|=2$ の場合、 $p_z=0$ をピークとするドームのようになるであろう。Fig. 4の x 軸(または y 軸)を p_z 軸にとってみる(in-plane)。この場合、形状の特徴を直感的に予測するのは難しいが、波動関数の x 軸(または y 軸)方向の広がりには $|m|=2, 1, 0$ の順に大きくなるので、コンプトンプロファイルの幅も $|m|=2, 1, 0$ の順に大きいであろう。

上述のような特徴を確かめてみるために、Hartree-Fock近似によるatomicな状態を仮定して、3d電子の $|m|=0, 1, 2$ の各磁気量子数に対応する運動量密度を求め、数値計算で二重積分を行い、コンプトンプロファイルを計算した^{19,20}。結果をFig. 5に示す。ここで、out-of-planeは一軸結晶場の軸方向(z 軸)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(x 軸または y 軸)を p_z 軸とした場合である。out-of-planeの場合はコンプトンプロファイルの幅も $|m|=0, 1, 2$ の順に大きい。また、 $|m|=0$ の場合、 $p_z=0$ 付近にコンプトンプロファイル構造がある。 $|m|=1$ の場合、 $p_z=0$ で波動関数の節があるため、コンプトンプロファイルは0となる。一方、 $|m|=2$ の場合、 $p_z=0$ をピークとするドームのようになる。in-plane場合、コンプトンプロファイルの幅は $|m|=2, 1, 0$ の順に大きい。Fig. 5にout-of-planeとin-planeの場合の差(異方性)を示す。磁気量子数 $|m|$ によって、コンプトンプロファイルの異方性に特徴があることがわかる。

以上から、磁気量子数 $|m|$ に依存した特徴的な波動関数の形状がコンプトンプロファイルの形状および異方性に反映していることがわかる。さらに、コンプトンプロファイルの測定を行う場合、out-of-planeの場合のほうがin-planeの場合より磁気量子数 $|m|$ に依存した波動関数の形状を観測しやすいことがわかる。

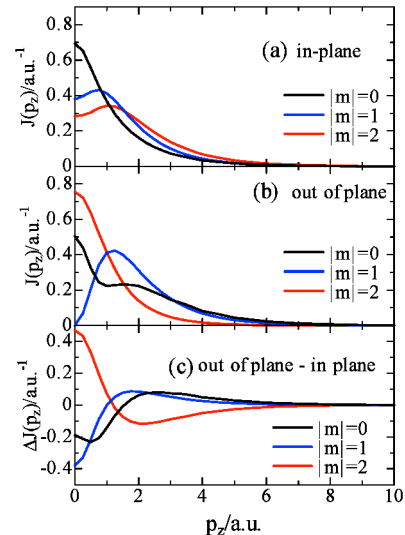


Fig. 5 Model Compton profiles with the magnetic quantum numbers of $|m|=0, 1, \text{ and } 2$.

6. Pd/Co人工格子の磁気コンプトンプロファイル²¹⁾

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^{6,7)}。例えば本研究で用いたPd(x nm)/Co(0.8 nm)人工格子($x=0.8, 1.6, 4.0$)の垂直磁気異方性エネルギーを測定すると $x=0.8$ の時 -1.30 Merg/cm³、 $x=1.6$ の時 1.45 Merg/cm³、 $x=4.0$ の時 2.89 Merg/cm³となる。垂直磁気異方性エネルギーが正の時垂直磁化膜であるので、 $x=1.6$ と 4.0 の場合が垂直磁化膜になる。Fig. 6にこれらの人工格子の磁気コンプトンプロファイルとその異方性を示す。Pd層の厚さに依存して、磁気コンプトンプロファイルの形状が変わる。Pd厚さ依存性はin-planeよりout-of-planeのほうが顕著である。また、異方性もPd層の厚さに依存している。

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²⁹⁾。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Fig. 5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、Pd4dの異方性の寄与は無視できることがわかった²¹⁾。

以上から、Co3dの異方性の寄与のみを考慮して磁気コンプトンプロファイルの異方性を再現するようにFig. 5に示したモデル計算のプロファイルをfitting関数として磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ の寄与を分離した。結果をTable IIに示す。垂直磁気異方性エネルギーが負である $x=0.8$ の場合は磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ の分布が20%, 40%, 40%に近く、波動関数は球対称に近い。一方、弱い垂直磁気異方性を有する $x=1.6$ の場合は磁気量子数 $|m|=1$ の割合が多い。強い磁気異方性を示す $x=4.0$ の場合は磁気量子数

Table II Population of the each magnetic quantum number $|m| = 0, 1, \text{ and } 2$ in Pd/Co multilayers

| | $ m = 0$ | $ m = 1$ | $ m = 2$ |
|-----------------------|-----------|-----------|-----------|
| Pd(0.8 nm)/Co(0.8 nm) | 19% | 40% | 41% |
| Pd(1.6 nm)/Co(0.8 nm) | 10% | 60% | 30% |
| Pd(4.0 nm)/Co(0.8 nm) | 29% | 21% | 50% |

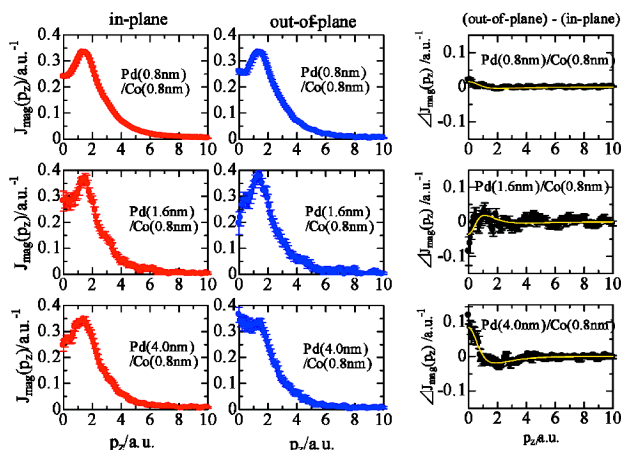


Fig. 6 Magnetic Compton profiles of Pd/Co multilayers and these anisotropies. Dots denote the experimental data and solid lines denote fitting results.

$|m| = 2$ の割合が多い。これまで、X線磁気円二色性の実験から、Pd/Co人工格子の垂直磁気異方性の起源は、Co3d電子の軌道磁気モーメントに異方性に起因することが指摘されている³⁰⁾。さらに、軌道磁気モーメントの異方性の起源はCo3d電子の磁気量子数 $|m| = 2$ に寄与であることが理論的に指摘されていた²⁶⁻²⁸⁾。強い磁気異方性を示す $x = 4.0$ の場合はこれまでの報告と同様、 $|m| = 2$ に寄与が大きい。一方、弱い垂直磁気異方性を有する $x = 1.6$ の場合は、 $|m| = 1$ 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。

7. Pd/Fe人工格子の磁気コンプトンプロファイル³¹⁾

Pd/Fe人工格子はFe層の厚さ2nm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³²⁾。また、垂直磁気異方性は有さず、磁気異方性の小さいFePd合金は高磁率材料として知られている^{33,34)}。Fig. 7にPd(1.6nm)/Fe(x nm)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。3d遷移金属のCoをFeで入れ替えると波動関数に異方性がなくなり、同時

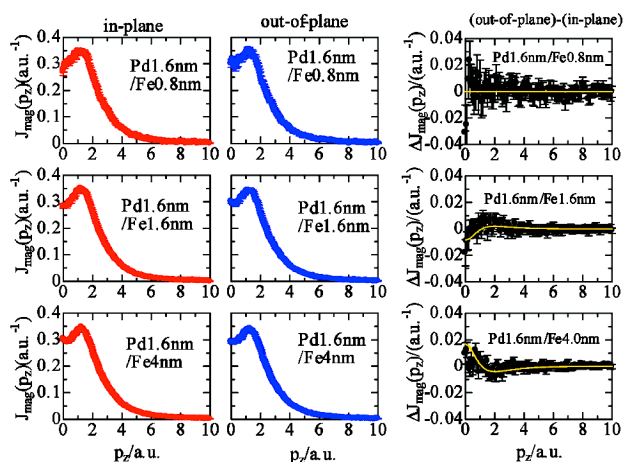


Fig. 7 Magnetic Compton profiles of Pd/Fe multilayers and these anisotropies. Dots denote the experimental data and solid lines denote fitting results.

に垂直磁気異方性が消失することから、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²⁶⁻²⁸⁾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。

8. Fe層の寄与とPt層の寄与の分離—Fe/Pt人工格子の磁気コンプトンプロファイル³⁵⁾

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⁸⁾。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⁸⁾。Pt(2.0nm)/Fe(x nm) ($x = 0.9, 2.3$)における磁気コンプトンプロファイルとその異方性をFig. 8に示す。磁気コンプトンプロファイルの形状とその異方性はFe層の厚さに依存して変わる。さらに、飽和磁化とFe層の体積比が線形であることから、磁気コンプトンプロファイルの面積を磁化測定の数で規格化し、Fe100%またはPt100%の場合に外そうしてFe層の磁気コンプトンプロファイルの寄与とPt層の磁気コンプトンプロファイルの寄与を分離した。Pt層の磁気コンプトンプロファイルとFe層の磁気コンプトンプロファイルをFig. 9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異方性は、垂直

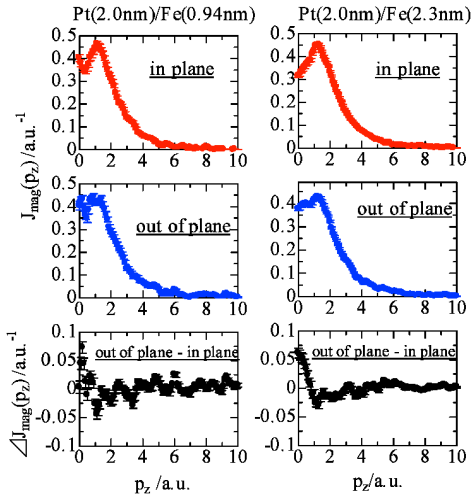


Fig. 8 Magnetic Compton profiles of Pt/Fe multilayers and these anisotropies.

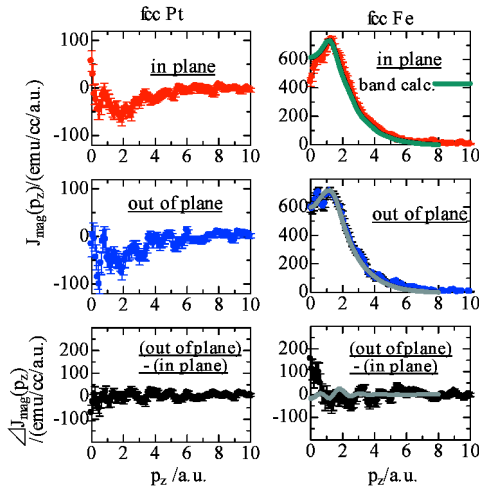


Fig. 9 Magnetic Compton profiles of fcc Pt and fcc Fe in Pt/Fe multilayers. Solid lines denote a band calculation of fcc Fe.

磁気異方性を有する Pd(4.0 nm)/Co(0.8 nm) 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。以上から、Fe/Pt 人工格子の磁気異方性は Fe 層の磁気異方性に起因することがわかった。

9. TbFeCo アモルファス合金の磁気コンプトンプロファイル^{36,37)}

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^{9,10)}。一方、同じ組成でも製膜時のスパッタリングガス圧力を制御することで垂直磁気異方性と面内磁気異方性を制御できる³⁸⁾。本研究では Ar 5 mTorr スパッタリングすると垂直磁気異

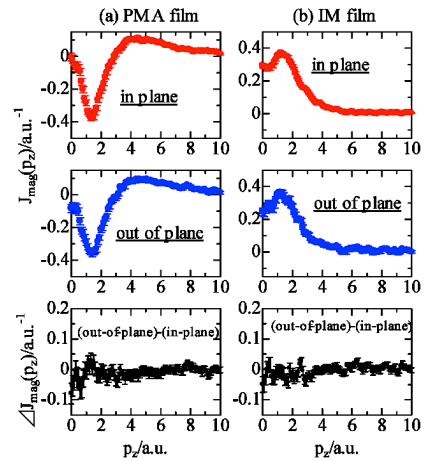


Fig. 10 Magnetic Compton profiles of TbFeCo films with perpendicular magnetic anisotropy (PMA) and isotropic magnetization (IM), and these anisotropies.

方性を有し、組成は Tb₂₇Fe₆₅Co₈ であった。Ar 30 mTorr でスパッタリングすると等方的磁化を有し、組成は Tb₂₈Fe₆₁Co₁₁ であった。しかし、ほぼ同じ組成なのに磁気異方性が異なるのはなぜか、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³⁹⁻⁴¹⁾。Fig. 10 は前述の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（磁気コンプトンプロファイル測定は室温）。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。しかし、垂直磁化膜と等方的磁化膜の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く、垂直磁気異方性の起源は直接的には電子構造ではないことがわかった。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⁴²⁾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スペリ磁性^{39-41,43)}を有するとする報告があるので、Tb4f が 4f⁸ の電子配置にあるとして磁気モーメントを $9\mu_B$ ⁴¹⁾、Fe-Co の平均磁気モーメントを TbFe₂ 中の Fe 磁気モーメント ($-1.8\mu_B$) 程度^{39,40)}と考えると磁気モーメントの角度を見積もった。結果を Table III 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。これは Tb4f 電子のランダム磁気異方性より Tb の 4f 電子と 3d 遷移金属の 3d 電子の交換相互作用 (Tb4f-TM3d 交換相互作用) が支配的であることを示す。一方、等方的磁気特性の場合は Tb の磁気モーメントが比較

Table III Tb 4f magnetic moments, μ_{Tb4f} , and average magnetic moments of Fe and Co, μ_{3d} , are estimated in TbFeCo amorphous films with perpendicular magnetic anisotropy (PMA) and isotropic magnetization (IM). Cant angles of μ_{Tb4f} and μ_{3d} with respect to applied magnetic field are shown as θ_{Tb4f} and θ_{3d} , respectively

| | magnetic moment | | cant angle | |
|-----------|--------------------|------------------|-------------------------------|-----------------------------|
| | μ_{Tb4f}/μ_B | μ_{3d}/μ_B | $\theta_{Tb4f}/\text{degree}$ | $\theta_{3d}/\text{degree}$ |
| PMA film. | 1.7 ± 0.17 | -0.47 ± 0.05 | 79 ± 1 | -75 ± 2 |
| IM film | -0.76 ± 0.08 | 0.95 ± 0.10 | -85 ± 1 | 58 ± 4 |

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。これはTb4f-TM3d交換相互作用よりTb4f電子のランダム磁気異方性が支配的であることを示す。この傾向はX線磁気円二色性による測定結果³⁹⁻⁴¹⁾と一致する。これらのことから、ランダム磁気異方性とTb4f-TM3d交換相互作用の関係がTbFeCoアモルファス合金の垂直磁気異方性の起源の重要な因子の1つであることがわかる。

10. まとめ

以上をまとめると、①磁気薄膜のスピンの依存した運動量密度の異方性の観測に成功した②金属人工格子の垂直磁気異方性は3d遷移金属の3d電子の異方性の寄与に起因する③TbFeCoアモルファス合金の垂直磁気異方性は電子構造の直接的異方性よりも磁気構造が間接的に寄与する、ことがわかった。

本稿で述べた方法のほかに斜入射配置で厚い基板に成膜した200 nm程度の薄膜の磁気コンプトンプロファイルの測定にも成功している⁴⁴⁾。このように、磁性薄膜の磁気コンプトンプロファイル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、KEK-PF-AR, SPring-8などの放射光施設の高度化に負うところが大きい。

謝辞

本稿で紹介した結果は伊藤文武名誉教授、尾池弘美技術職員、高野勝昌博士、大田実氏、村山栄司氏(群馬大学工学研究科)、劉小晰准教授、森迫昭光教授(信州大学工学部)、櫻井吉晴博士、伊藤真義博士(JASRI/SPring-8)、小泉昭久博士、永尾俊博氏(兵庫県立大学理学部)、河田洋教授、安達弘通博士(高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所)との共同研究です。

本研究は高エネルギー加速器研究機構共同利用課題(2003G163, 2005G116), SPring-8 パワーユーザー課題(2003B2980-PU, 2004A3890-PU, 2005A5890-PU and 2005B7003-PU), 群馬大学ATEC研究プロジェクト(Project 2003-Project2006)によるものです。

- 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/siryu/haihu47/siryu3.pdf>
- 2) P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt and A. Suna: Appl. Phys. Lett. **47**, 178 (1989).
- 3) F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, H. C. Donkersloot and W. Hoving: Appl. Phys. A **49**, 507 (1989).
- 4) F. J. A. den Broeder, D. Kuiper, A. P. van de Mosselaer and W. Hoving: Phys. Rev. Lett. **60**, 2769 (1988).
- 5) P. F. Carcia: J. Appl. Phys. **63**, 5066 (1988).
- 6) H. Nemoto, H. Nakagawa and Y. Hosoe: IEEE Trans. Mag. **39**, 2714 (2003).
- 7) H. Nemoto and Y. Hosoe: J. Appl. Phys. **97**, 10J109 (2005).
- 8) T. Katayama, Y. Suzuki, Y. Nishihara, T. Sugimoto and M. Hashimoto: J. Appl. Phys. **69**, 5658 (1991).
- 9) H. Saga, H. Nemoto, H. Sakeda and M. Takahashi: J. Magn. Soc. Jpn. **23**, 225 (1999).
- 10) H. Katayama, S. Sawamura, Y. Ogimoto, J. Nakajima, K. Kojima and K. Ohta: J. Magn. Soc. Jpn. **23**, 233 (1999).
- 11) 例えば「量子力学 I, II」小出昭一郎著, 裳華房.
- 12) 例えば「固体物理学入門 上・下」キッテル著, 宇野良清, 津谷昇, 森田章, 山下次郎訳, 丸善.
- 13) N. Sakai and N. Ôno: Phys. Rev. Lett. **37**, 351 (1976).
- 14) "X-ray Compton Scattering" eds. M. J. Cooper, P. E. Mijnarends, N. Shiotani, N. Sakai and A. Bansil: Oxford University Press, New York, 2004.
- 15) M. Blume: J. Appl. Phys. **57**, 3615 (1985).
- 16) N. Sakai: J. Appl. Crystallogr. **29**, 81 (1996).
- 17) A. Koizumi, S. Miyaki, Y. Kakutani, H. Koizumi, N. Hirao-ka, K. Makoshi, N. Sakai, K. Hirota and Y. Murakami: Phys. Rev. Lett. **86**, 5589 (2001).
- 18) 坂井信彦, 田中良和: 応用物理 **61**, 226 (1992).
- 19) F. Biggs, L. B. Mendelsohn and J. B. Mann: At. Data, Nucl. Tables **16**, 201 (1975).
- 20) M. Ota, H. Sakurai, F. Itoh, M. Itou and Y. Sakurai: J. Phys. Chem. Solids. **65**, 2065 (2004).
- 21) H. Sakurai, M. Ota, F. Itoh, M. Itou, Y. Sakurai and A. Koizumi: Appl. Phys. Lett. **88**, 062507 (2006)
- 22) Y. Kakutani, Y. Kubo, A. Koizumi, N. Sakai, B. L. Ahuja and B. K. Sharma: J. Phys. Soc. Japan **72**, 599 (2003).
- 23) Y. Kubo and S. Asano: Phys. Rev. B **42**, 4431 (1990).
- 24) M. J. Cooper, S. P. Collins, D. N. Timms, A. Brahmia, P. P. Kane, R. S. Holt and D. Laundry: Nature **333**, 151 (1988).
- 25) 「磁気工学の基礎 I」太田恵造著, 共立出版
- 26) K. Kyuno, J.-G. Ha and R. Yamamoto: Phys. Rev. B **54**, 1092 (1996).
- 27) K. Kyuno, J.-G. Ha, R. Yamamoto and S. Asano: J. Phys. Condens. Matter **8**, 3297 (1996).
- 28) K. Kyuno, J.-G. Ha, R. Yamamoto and Asano: Solid State Communications **98**, 327 (1996).
- 29) H. Sakurai, F. Itoh, Y. Okabe, H. Oike and H. Hashimoto: J. Magn. Magn. Mater. **198-199**, 662 (1999).
- 30) D. Weller, Y. Wu, J. Stohr, M. G. Samant, B. D. Hermsmeier and C. Chappert: Phys. Rev. B **49**, 12888 (1994).
- 31) H. Sakurai, F. Itoh, M. Ota, H. Oike, K. Takano, X. Liu and H. Kawata: J. Magn. Magn. Mater. **286**, 410 (2005).
- 32) H. Mühlbauer, CH. Müller and G. Dumpich: J. Magn. Magn. Mater. **192**, 423 (1999).
- 33) S. Chikazumi: Physics of Magnetism, John Wiley and Sons, New York, 1964.
- 34) M. R. Bozorth: Ferromagnetism, N. J. D. Van Nostrand Co., Ltd., Princeton, 1951.
- 35) H. Sakurai, E. Murayama, M. Ota, K. Takano, F. Itoh, X. Liu, H. Kawata, H. Adachi, Y. Sakurai, M. Itou and A.

- Koizumi: J. Magn. Magn. Mater. **310**, 2710 (2007).
- 36) X. Liu, A. Morisako, H. Sakurai, Y. Sakurai, M. Itou and A. Koizumi: J. Magn. Magn. Mater. **310**, 1744 (2007).
- 37) H. Sakurai, M. Ota, X. Liu, A. Morisako, Y. Sakurai, M. Itou, T. Nagao and A. Koizumi: J. Appl. Phys. **102**, 013902 (2007).
- 38) M. Murakami and M. Birukawa: J. Appl. Phys. **95**, 7327 (2004).
- 39) C. Bordel, S. Pizzini, J. Vogel, K. Mackay, J. Voiron, R. M. Galera, A. Fontaine, P. Auric, J. B. Goedkoop and N. B. Brookes: Phys. Rev. **B56**, 8149 (1997).
- 40) C. Bordel, S. Pizzini, J. C. Toussaint, B. Kervorkian and J. Voiron: J. Magn. Magn. Mater. **193**, 170 (1999).
- 41) A. Agui, M. Mizumaki, T. Asahi, J. Sayama, K. Matsumoto, T. Morikawa, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Osaka and Y. Miura: Trans. Magn. Soc. Japan **4**, 326 (2004).
- 42) V. G. Harris and T. Pokhil: Phys. Rev. Lett. **87**, 067207 (2001).
- 43) J. M. D. Coey: J. Appl. Phys. **49**, 1646 (1978).
- 44) H. Sakurai, F. Itoh, M. Ota, K. Takano, X. Liu, H. Oike and H. Kawata: J. Phys. Chem. Solids **65**, 2083 (2004).

● 著者紹介 ●



櫻井 浩

群馬大学大学院工学研究科
生産システム工学専攻・准教授
E-mail: sakuraih@el.gunma-u.ac.jp
専門：磁気工学

【略歴】

1988年東北大学工学部材料物性学科卒業。1993年群馬大学工学研究科電子情報工学専攻博士後期課程修了，博士（工学）。群馬大学工学部電気電子工学科助手，群馬大学工学部電気電子工学科助教授を経て，2007年4月から現職。

Anisotropy of magnetic Compton profiles in perpendicular magnetic anisotropy films

Hiroshi SAKURAI Department of Production Science and Technology, Gunma University
1-5-1 Tenjin-cho, Kiryu, Gunma 376-8515, Japan

Abstract We have succeeded to observe anisotropy of spin dependent momentum distribution of perpendicular magnetic anisotropy (PMA) thin films by means of magnetic Compton scattering. These experiments suggest that PMA of metallic multilayers constituted by noble metals and 3d transition metals come from anisotropy of 3d electrons of the 3d transition metals. However, a TbFeCo amorphous alloy shows an isotropic electronic structure and the PMA of the TbFeCo amorphous alloy reflects the magnetic structure indirectly.