

磁気コンプトン散乱を用いた垂直磁化膜の磁化過程の研究

安居院あかね

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門 放射光科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

櫻井 浩

群馬大学大学院理工学府 電子情報部門 〒376-8515 群馬県桐生市天神町 1-5-1

要旨

磁性体の特性の評価と言えは全磁化曲線の測定を挙げることができる。では、その全磁化の振る舞いは何が担っているのだろうか。磁気コンプトン散乱プロファイルからスピン磁気モーメントが算出できることを利用して、近年、我々は磁化過程を量子力学的なミクロスコピックな観点から調べる方法を提案している。本稿では磁石材料の評価や磁気記録材料の開発への応用が期待される磁気コンプトン散乱を利用した磁化曲線測定法を解説する。また、我々の最近の研究から希土類-遷移金属系合金薄膜に適用した結果について紹介する。

1. はじめに

高度情報化社会などと改めて言うまでもなく、情報技術は現在の社会に必要不可欠である。電気、磁気のもたらす物理現象は、磁気工学を介し情報を保存、伝送する技術に応用される。(分野によって磁気記憶もしくは磁気記録と呼ばれるが技術的にはほぼ区別がないのでここでは磁気記録を使う。) 磁気記録は情報を磁性体の磁化の配列に対応させ保存する技術であり、その材料である磁気材料もまたより特性の良いものを求めて日々研究が進められている。

磁気を利用した記録技術の実用化が始まった当初は磁性体の残留磁化の強弱を利用するアナログ方式が用いられていた。コンピュータの一般化に伴いフロッピーディスクやハードディスクデバイスが普及していくとともに、記録方式は磁化の安定した飽和磁化の向きが揃った最小単位の領域を1ビットとして情報の記録に利用するデジタル方式に変わっていった。20世紀半ばから21世紀初頭までの磁気記録は磁性体でできた磁化膜に面内方向に磁気異方性をもたせ磁化を記録するのが主流であった。当初の記録するデータは数字、アルファベットなどからなるテキスト程度ものだったが時代が下るに連れ、画像、動画へとデータセットのデータ量が増大し、同時に記録密度の向上また、書き込み書き出しの高速化が大きな課題となっていった。記録密度を高めるには1ビットに必要な領域を小さくしなければならない。しかし、この領域を小さくし過ぎると熱揺らぎの効果で磁化の反転が起き記録が破壊されてしまう。また、面内で磁化の方向が向かい合えば、ビット境界の近傍ではエネルギー的にも磁化反転が顕著になってしまう。この現象により面内磁気記録の限界は200 Gbit/inch²

と言われていた。

約十年前、記録材料である磁化膜に面方向に対して垂直方向に磁気異方性を持たせ、磁化の向きを面に対し垂直方向に配列して記録する垂直磁化方式が一般向け商品に搭載され、磁気記録の分野に大きな変化をもたらした¹⁾。垂直磁気記録では減磁現象の影響を軽減させ、記録構造が安定化し高密度磁気記録に適していると言われていた。垂直磁気記録材料としてはCo/Pd人工格子多層膜や希土類-遷移金属(RE-TM)合金などが挙げられる。RE-TM合金は熱揺らぎ耐性にも優れていることから、とくにTb-Fe-Co系合金は1980年代から90年代にかけて光磁気ディスクの材料として用いられた²⁾。RE-TM合金は比較的均一かつ大面積の成膜が可能であり、また組成の制御が容易であるなど材料設計の点でも有利な特色をもつ。また、近年は磁気トンネル接合に垂直磁気異方性をもつRE-TM層を加え磁気スイッチングを制御する研究が盛んである。一方、角型比の高い垂直磁化膜は保磁力が高いスイッチング磁場の低減が課題である。これに対しては熱アシスト磁気スイッチング、マイクロ波アシスト磁気スイッチング等の研究が進められている。

RE-TM膜は構成元素のRE, TMがともに磁性元素である。REが重希土類の場合は、REに由来する磁化とTMに由来する磁化は全体としてフェリ磁性的配列を形成している。また、TMの磁気モーメントに対し重希土類の磁気モーメントは円錐状に分布している。このような磁気構造はスペリ磁性と呼ばれる³⁻⁵⁾。Fig. 1にマクロスコピック磁性とミクロスコピックな磁性の模式図を示す。

全磁化の磁場に対するマクロスコピックな振る舞いの起源を考えれば、磁性体の構成元素に由来するスピン磁気

モーメントや軌道磁気モーメントのミクロスコピックな磁性の総合的な応答と考えられる。磁気スイッチングは磁性体の磁化の磁場への応答であり、本質的なスイッチング磁場低減のためには磁気スイッチングプロセスの基礎的知見が必要である。磁気特性は磁化曲線の測定によって評価される。一般的な磁化曲線は振動試料型磁力計 (VSM: Vibrating Sample Magnetometer) や超伝導量子干渉計 (SQUID: Superconducting Quantum Interference Device) で測定される全磁化の磁場変化への応答である。

放射光は多くの研究分野で利用されている。磁性体の研究分野においては、磁性のミクロスコピックな状態を観察するのに、偏光を積極的に利用した磁気円二色性吸収分光, 磁気 EXAFS, スピン分解光電子分光, 磁気イメージングと言った磁気分光の他, 共鳴, 非共鳴の磁気散乱核共鳴散乱などによって実験室では得難い情報を得ることができる^{6,7)}。とくに磁気円二色性吸収分光は総和則を使って磁気モーメントの算出ができ, これを利用した研究結果^{6,7)}も多く報告されているが, 電子数の見積もりや吸収端の分離など, 解析に経験が必要な部分がややある。また軟 X 線を利用する場合は侵入長が短いことから, 表面の効果が寄与しやすくバルクの測定は不得手とされる。コンプトン散乱は利用する X 線のエネルギーが高いので表面の効果が問題になることはほぼない。

放射光をプローブとしたコンプトン散乱測定については既に本誌でも何度か取り上げられている^{8,9)}。本稿では, 磁気コンプトン散乱の印加磁場依存性を利用したスピン磁気モーメント選択磁化曲線の測定の方法を紹介し, さらにこれを利用して垂直磁気異方性をもつ RE-TM 膜ミクロスコピックな磁化過程を観測した最近の研究結果について紹介する。

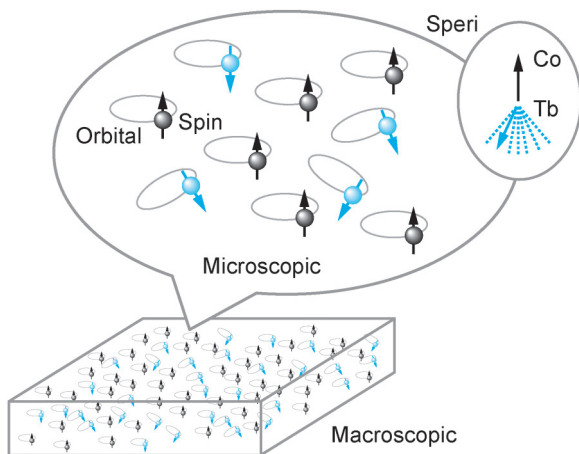


Fig. 1 Schematic illustration of macroscopic and microscopic magnetism of Tb-Co alloy. The magnetic moment of Tb randomly is distributed in conical. The net magnetic moment of Tb arranges to anti parallel to that of Co. The magnetic structure is called speri-magnetic structure.

2. コンプトン散乱

20世紀前半の量子力学黎明期に, X 線が物質中の電子と衝突すると入射 X 線よりエネルギーの低い X 線が観測されることをアーサー・コンプトンが実験により確かめ, 光量子仮説を実証された^{10,11)}。この電子による X 線の非弾性散乱は後にコンプトン効果と呼ばれその散乱はコンプトン散乱と呼ばれるようになった。このことから高校物理の教科書にもコンプトン散乱は光の粒子性を示す実験として紹介されている。しかしながら, 物性測定に使われていることはあまり知られていない。キッテルの固体物理入門では, 1976年に出版された原著第5版¹²⁾からフェルミ表面の観測方法の一つとしてコンプトン散乱が挙げられており, 人知れず(?) 40年近い歴史をもっている。この例だけでなく, コンプトン散乱実験は電子の運動量分布, 波動関数の形状, さらに円偏光を利用した磁気コンプトン散乱ではスピンに依存した電子の状態についての情報を得ることができる¹³⁻¹⁸⁾。1980年代以降, 放射光施設でコンプトン散乱, 磁気コンプトン散乱測定が測定できるようになり, さまざまな物質でコンプトン散乱を利用した物性研究が報告されるようになった¹⁹⁾。

現在コンプトン散乱実験が可能な主な放射光施設として SPring-8 と ESRF が挙げられる。Fig. 2 に SPring-8・BL08W の磁気コンプトン散乱装置の模式図を示す。BL08W では磁場の発生に超伝導マグネットを利用しており, $-2.5\text{ T} \sim 2.5\text{ T}$ の磁場を試料に印加できる^{20,21)}。Fig. 2 右上に試料ホルダーを示している。試料取り付け板は $16\text{ mm} \times 16\text{ mm}$, 試料を見込む穴は直径 3 mm 程度である。これに試料を挟み測定装置内に取り付ける。

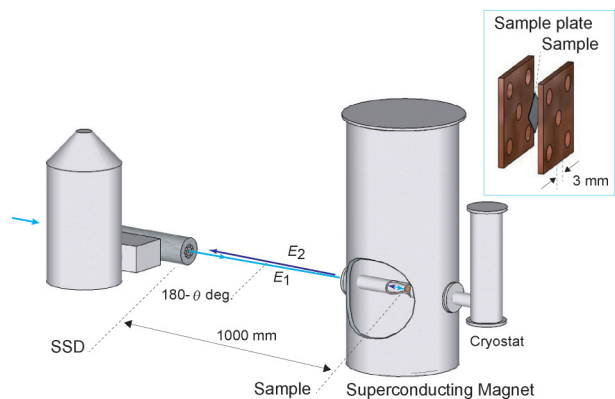


Fig. 2 (Color online) Layout drawing of the magnetic Compton scattering measurement apparatus at BL08W, SPring-8, Japan. The emitted circularly polarized x-ray from Wiggler monochromatized to be energy of E_1 and irradiates on a sample. The spot size us typically $1 \times 0.8\text{ mm}^2$. Sample sits in a superconducting magnet. Temperature can be changed. The scattered x-ray, which has energy E_2 , is detected by solid state device (SSD). SSD is installed at 1 m from the sample at scattering angle of $\theta = 178\text{ deg}$. The momentum resolution is about $0.43\text{ p}_z(\text{au})$.

散乱実験の多くの場合、X線の散乱は横軸をエネルギー（もしくは波長、振動数）として表示され、その形状はスペクトルとして表示される。これに対しコンプトン散乱では横軸を運動量として表示され、その形状はプロファイルと呼ばれる。この呼び方に馴染みを感じられないのが、コンプトン散乱が一般的な物性測定方法として認識されていない理由の一因かもしれない。

高校物理の教科書などの弾性散乱的な単純な記述では、エネルギー E_1 をもつ X 線が電子と衝突し散乱角 θ にエネルギー E_2 をもつ X 線が観測されるとき、エネルギー保存則と運動量保存則から X 線が光子であることを説明している。ここには電子は静止しているという暗黙の仮定がある。ここでは、観測されるのは線スペクトルであり電子の運動に関する情報は得られない。しかし実際には電子は運動しており、その運動はドップラー効果により散乱 X 線のエネルギーに幅を与える。この幅は物質中の電子の運動量分布を反映する。言い換えれば、X 線が電子から受けるドップラー効果は、散乱方向の電子の運動量成分に比例する。

コンプトン散乱を厳密に記述するには相対論的量子電磁気学の計算が必要となる。物性測定にコンプトン散乱を利用する場合には、X 線エネルギーが電子の静止エネルギーに比べて十分小さいとし摂動計算を利用することが多い。入射 X 線が円偏光している場合、X 線と電子の散乱には電子の電荷に依存した散乱振幅のほか電子のスピンの依存した散乱振幅がある。これから得られるコンプトンプロファイルは磁気コンプトンプロファイル (MCP: Magnetic Compton Profile) と呼ばれる。また、入射 X 線のエネルギーが原子内の電子の束縛エネルギーより十分大きく、衝突時間が非常に短いという近似、インパルス近似が成り立つ時、軌道の寄与は無視され、磁気的に活性な電子のスピンの磁気モーメントの寄与だけが観測されることになる。

3. 計算方法, 測定方法

Fig. 3(a) に Fe 箔に $E_1 = 183 \text{ keV}$ の X 線を入射し、散乱角 $\theta = 178$ 度で測定したエネルギースペクトルを示す。110 keV 付近に現れている大きなピークがコンプトン効果によるものである。70~90 keV に現れている複数のピークは、ビームラインや試料まわりに置かれた遮蔽体の Pb からの蛍光線である。実際の測定の際はこれら余分な散乱をできるだけ減らすように調整する。コンプトン散乱では X 線と電子のエネルギー保存則と運動量保存則を考えると、散乱 X 線のエネルギー E_2 と電子の運動量 p_z はそれぞれ(1), (2)のように書ける。

$$E_2 = \frac{E_1}{1 + (E_1/mc^2)(1 - \cos \theta)}, \quad (1)$$

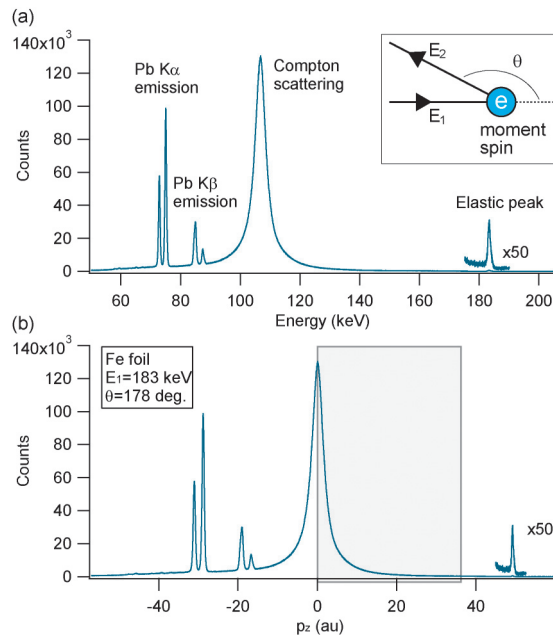


Fig. 3 (a) Energy spectrum of Compton scattering of Fe foil. The low energy peaks are fluorescence lines from Pb which installed on the measurement system as x-ray absorbers. (b) Compton profile of Fe. The $p_z(\text{au})$ axis is converted from the energy axis of (a).

$$\frac{p_z}{mc} \cong \frac{E_2 - E_1 + (E_2 E_1 / mc^2)(1 - \cos \theta)}{\sqrt{E_1^2 + E_2^2 - 2E_1 E_2 \cos \theta}} \quad (2)$$

ここで m は電子の質量、 c は光速である。原子単位 (atomic unit: au) $m = 1$, $c \cong 137$ を使えば簡潔な形で、散乱エネルギーから電子の運動量を計算することができる^{19 Chap. 5.2}。Fig. 3(a)の横軸を式(1), (2)を使って $p_z(\text{au})$ として表示したのが Fig. 3(b)である。本稿では、吸収の効果や測定のバックグラウンドは適宜補正（もしくは無視）して、この縦軸のコンプトン散乱の強度 I を散乱断面積補正^{19 Chap. 5.4}をしたものをコンプトン散乱プロファイル J とする。また、コンプトンプロファイルは $p_z = 0$ を中心左右対称になるので図中に四角で囲んだ片側の範囲だけで表示することが多い。

E_2 の散乱 X 線を観測する確率は電子が散乱方向に運動量 p_z を持つ確率に比例する。 $J(p_z)$ は x, y 方向の運動量 p_x, p_y で電子の運動量密度 $\rho(p_x, p_y, p_z)$ を二重積分した量として定義される^{19 Chap. 1}。

$$J(p_z) = \iint \rho(p_x, p_y, p_z) dp_x dp_y \quad (3)$$

前述したように、コンプトン散乱には電子の電荷に依存した散乱振幅と電子のスピンの依存した散乱振幅がある。スピンの依存したコンプトンプロファイルを $J_{\text{mag}}(p_z)$ とすると、

$$J_{mag}(p_z) = \iiint \{\rho_{maj}(p_x, p_y, p_z) - \rho_{min}(p_x, p_y, p_z)\} dp_x dp_y \quad (4)$$

と書ける¹⁷⁾。ここで、 $\rho_{maj}(p_x, p_y, p_z)$ 、 $\rho_{min}(p_x, p_y, p_z)$ はそれぞれマジョリティスピン、マイノリティスピンの運動量密度である。コンプトン散乱の散乱断面積を厳密に記述するのは教科書¹⁹⁾にあるようにある程度煩雑な式になるが、大まかに言えば全散乱断面積は電荷に依存したコンプトンプロファイルと $J_{mag}(p_z)$ をそれぞれ散乱断面積の補正をしたものの和になる。 $J_{mag}(p_z)$ の項は、コンプトン散乱断面積を表す式では入射光の虚数部に含まれ、入射光が円偏光のときこの散乱が観測される。

実験で測定できるのは散乱強度である。以下、やや煩雑になるが、マジョリティスピン、マイノリティスピンのコンプトンプロファイルをそれぞれ $J_{maj}(n_{maj}, p_z)$ と $J_{min}(n_{min}, p_z)$ 、と書く。ここで n_{maj} と n_{min} はマジョリティスピン、マイノリティスピンの電子数である。さらに、磁化の方向に依存した散乱断面積をそれぞれ A_{spin}^+ 、 A_{spin}^- 、と書く。磁化を反転した場合は同じ円偏光の入射線に対して上付きの符号が逆になる。また、電荷の散乱断面積はパリティは依存しないので A_{nor} と書くことにする。入射 X 線のパリティ方向対して試料をプラス向きに磁化した場合のコンプトン散乱エネルギースペクトル $I^+(E_2)$ とマイナス向きに磁化した場合の $I^-(E_2)$ は

$$\begin{aligned} I^+(E_2) &= (A_{nor} + A_{spin}^+) J_{maj}(n_{maj}, p_z) + (A_{nor} + A_{spin}^-) \\ &\quad \times J_{min}(n_{min}, p_z) = (A_{nor} + A_{spin}^+) J_{maj}(n_{maj}, p_z) \\ &\quad + (A_{nor} - A_{spin}^+) J_{min}(n_{min}, p_z), \\ I^-(E_2) &= (A_{nor} + A_{spin}^-) J_{maj}(n_{maj}, p_z) + (A_{nor} + A_{spin}^+) \\ &\quad \times J_{min}(n_{min}, p_z) = (A_{nor} - A_{spin}^+) J_{maj}(n_{maj}, p_z) \\ &\quad + (A_{nor} + A_{spin}^-) J_{min}(n_{min}, p_z) \end{aligned}$$

と書ける。この結果から

$$\begin{aligned} I^+(E_2) - I^-(E_2) &= 2A_{spin}^+ \{J_{maj}(n_{maj}, p_z) - J_{min}(n_{min}, p_z)\}, \\ I^+(E_2) + I^-(E_2) &= 2A_{nor} \{J_{maj}(n_{maj}, p_z) + J_{min}(n_{min}, p_z)\} \end{aligned}$$

を得る。ここで磁気効果の比率 R は

$$\begin{aligned} R &= \frac{\int \{I^+(E_2) - I^-(E_2)\} dE_2}{\int \{I^+(E_2) + I^-(E_2)\} dE_2} \\ &= \frac{A_{spin}^+ \int \{J_{maj}(n_{maj}, p_z) - J_{min}(n_{min}, p_z)\} dp_z}{A_{nor} \int \{J_{maj}(n_{maj}, p_z) + J_{min}(n_{min}, p_z)\} dp_z} \\ &= \frac{A_{spin}^+ n_{mag}}{A_{nor} n_{total}} \quad (5) \end{aligned}$$

で表される。ここで、 n_{total} 、 n_{mag} はそれぞれ全電子数、スピン電子数を表す。例えば、Fe を標準試料として磁気効果

$$R_{Fe} = \frac{A_{spin}^+ n_{Fe}^{mag}}{A_{nor} n_{Fe}^{total}} \quad (6)$$

がわかれば、未知の試料について

$$n_{mag} = \frac{R}{R_{Fe}} \frac{n_{total}^{Fe}}{n_{total}} n_{mag}^{Fe} \quad (7)$$

となる。1 電子スピンの磁気モーメントはボーア磁子に対応するので、磁気コンプトン散乱測定からスピン電子数が求められれば、スピン磁気モーメントを得ることができ^{19) Chap. 5, 10)}。

様々な磁場下で MCP を測定すれば、式(7)からそれぞれの磁場でのスピン磁気モーメントを得ることができる。これを印加磁場依存性としてプロットすればスピン磁気モーメントについて磁化曲線を得る。我々はこれをスピン選択磁化曲線 (SSMH: Spin Selective magnetic curve) と呼んでいる^{22,23)}。

全磁気モーメント (μ_T) がスピン磁気モーメント (μ_S) と軌道磁気モーメント (μ_L) で構成されているとすると、測定方向への射影成分の大きさを考えれば

$$\mu_T = \mu_S + \mu_L \quad (8)$$

とかける。全磁化曲線と SSMH がわかれば、 $\mu_L = \mu_T - \mu_S$ から、軌道選択磁化曲線 (OSMH: Orbital Selective magnetic curve) を得ることができる²⁴⁾。

BL08W の場合は、同じ円偏光で同じエネルギーを持つ X 線を入射してコンプトン散乱強度を測定し、磁場反転で MCP を測定している。様々な磁場下で MCP を測定するといっても、磁化曲線としてプロットできるデータを揃えるには測定の順番に注意する必要がある²²⁾。Fig. 4 に SSMH を測定するためにコンプトン散乱を測定するときの手順を模式的に示した。Fig. 4 上段の太線のような磁化曲線を持つ試料を測定する場合を考える。ある大きさの磁場を A, B, C としたとき、大きさが同じで符号が反対の磁場を a, b, c と書いている。磁場を A→B→C→a→b→c と変えながらコンプトン散乱強度を $I_A \rightarrow I_B \rightarrow I_C \rightarrow I_a \rightarrow I_b \rightarrow I_c$ と測定する。 $I_A - I_a$, $I_B - I_b$, $I_C - I_c$, からスピンモーメント μ_S^A , μ_S^B , μ_S^C を算出し磁場の関数としてプロットし SSMH としている。

また試料が化合物である場合、印加磁場依存性 μ_S は各構成元素のもつスピン磁気モーメントの和になる。コンプトン散乱プロファイルは各構成元素の寄与するプロファイルの重ね合わせと考えることができるので、MCP を構成元素の寄与別に分離しその印加磁場依存性をプロットすれば元素別の SSMH を得ることができる²⁴⁾。

Fig. 4 下段にプラス磁場 (I_A)、マイナス磁場 (I_a)、で測定したコンプトン散乱とその強度の差分 ($I_A - I_a$) を示

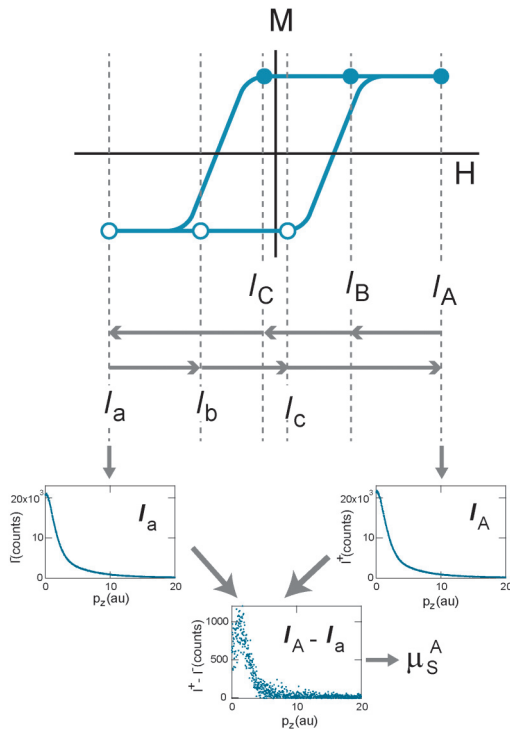


Fig. 4 Illustration of the procedure for measurement of the applied magnetic field dependence of magnetic Compton scattering to obtain spin selective magnetization curve.

す。(Fig. 4では Tb-Co 試料, $H=2.5$ T で測定したもの。) RE-TM のようにフェリ的な磁性を持つものではコンプトン散乱自体のカウント数が多くても磁気効果は小さく MCP としてのカウント数は小さくなり十分な統計を得るためには測定時間がかかることがある。 μ_S を求める計算ではプロファイル積分を取るのに注意が必要である。また、シグナルとノイズの比 (S/N) を上げるためには基板からの寄与を少なくするなど工夫が必要である。我々が SSMH を測定するときは、各磁場での測定時間を長くして磁場の掃引をループを一周 ($I_A \rightarrow I_B \rightarrow I_C \rightarrow I_a \rightarrow I_b \rightarrow I_c$) にするのではなく、各磁場での測定時間を適宜短くし $I_A \rightarrow I_B \rightarrow I_C \rightarrow I_a \rightarrow I_b \rightarrow I_c \rightarrow I_A \rightarrow I_B \rightarrow I_C \rightarrow I_a \rightarrow I_b \rightarrow I_c \rightarrow \dots$ と磁場の掃引をループを数周し、同じ磁場同士で計算結果を積算するようにしている。

4. 希土類-遷移金属膜の磁気コンプトン散乱

4.1 試料

基板からの散乱のため S/N が落ちると予想される薄膜のコンプトン散乱測定の場合、基板には電子密度が小さい軽元素で構成されるできるだけ薄いものを選ぶ。MCP 測定の場合特に非磁性体を選ぶ。我々は薄膜試料の基板にはアルミ箔 (Al, $12 \mu\text{m}$) もしくはポリイミドフィルム、(カプトン膜 (東レデュポン社), $5 \mu\text{m}$ もしくは $7.5 \mu\text{m}$) を使っている。この基板の上に Tb, Co, Fe のチップをターゲッ

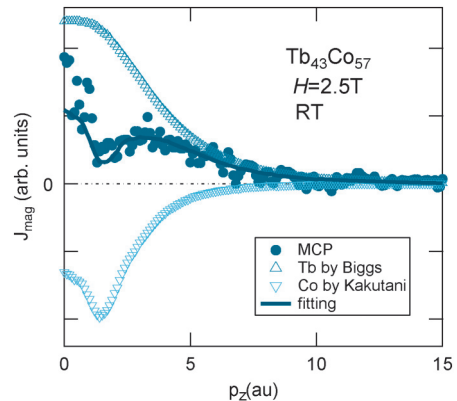


Fig. 5 MCP of amorphous $\text{Tb}_{43}\text{Co}_{57}$ film at $H=2.5$ T at room temperature in perpendicular direction to sample surface: closed circles, measured profile; solid line: the result of least-square fitting; inverse triangles: Tb 4f component²⁹; and triangles: Co component²⁰.

トとして RF スパッタリング法で蒸着成膜した²⁵)。多層膜試料はレイヤー層と交互に蒸着し成膜した。

本稿で紹介する試料は成膜した後、X 線回折法 (XRD: X-Ray Diffraction) で測定し、ターゲットチップの金属の構造に起因するピークが観測されないことから、アモルファス状に成膜できていることを確認した。組成比の確認は電子線マイクロアナライザー (EPMA: Electron Probe Micro-Analysis) で行った²⁶)。また、全磁化測定は SQUID 磁力計で測定した。

SQUID 磁力計による全磁化測定においては RE-TM 膜 1 枚で測定したが、MCP 測定の際は、散乱体の体積を実効的に稼ぐため、基板ごと薄膜を重ねて測定試料とした。これを試料ホルダ (Fig. 2 右上) にずれないように挟み、測定装置に取り付けた。

4.2 $\text{Tb}_{43}\text{Co}_{57}$ ²⁴)

Fig. 5 に厚さ $12 \mu\text{m}$ の Al 箔上に、厚さ $2.34 \mu\text{m}$ で成膜された $\text{Tb}_{43}\text{Co}_{57}$ の膜の面直方向の MCP を示す。●で示しているのが室温で印加磁場 $H=2.5$ T での測定結果である。一般に $2 p_z(\text{au}) \sim 10 p_z(\text{au})$ に RE 4f 成分, TM 3d 成分が広がっている。 $2 p_z(\text{au})$ 以下には遍歴成分が広がっている。測定から得られた MCP から全体として磁化をもっていることがわかる。

また、Fig. 6 に実線でこの試料の面直方向の全磁化曲線を示す。この試料では磁化の垂直成分に常磁性成分が残っていて、この測定範囲では磁化は飽和していない。

MCP 測定をいくつかの磁場下で行った。これらの結果について、事前に標準試料とした Fe で得られた結果から、3 章で述べたような計算で本試料のスピンの磁気モーメントを算出し、SSMH としてプロットしたのが Fig. 6 の●である。全磁化曲線と SSMH を比較すると磁場に対する振る舞いの全体の傾向は似ているが大きさは SSMH の方が小

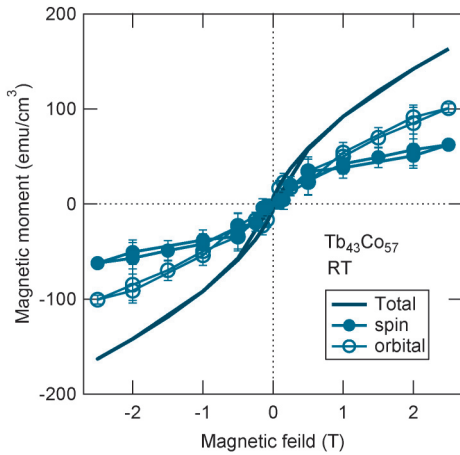


Fig. 6 Magnetization curves of amorphous $Tb_{43}Co_{57}$ film. Solid line: total magnetization curve; closed circles: spin-specific magnetization curve; open circles: orbital-specific magnetization curve.

さいことがわかる。軌道成分がこの差を担っていると考えられる。全磁化曲線とSSMHの差分として求めたOSMHを○で示す。これらから、全磁化曲線、SSMH、OSMHが全磁場範囲で同じ向きを向いている。詳細に見れば全磁化曲線の開口が閉じる磁場の $H=1$ T付近でSSMHとOSMHの傾斜が変わっている。

TbとCoがスピン成分をどのように担っているかを考える。Tbの磁化の発現に関わる電子は4fと5dとであるが、5dの寄与は小さいと考えると4fだけ考えればよい。Coからの寄与は3d, 4s4pからの寄与が考えられる。

Zukowskiら^{27,28)}は、REとTMの化合物の先行研究となる $HoFe_2$ のMCP測定を報告している。 Ho 4f成分は、Biggsら²⁹⁾によって与えられている自由原子の4f軌道のコンプトンプロファイルの理論計算を用いて記述できることを指摘している。また、Feについても、Biggsらによって与えられている自由原子の3d軌道のコンプトンプロファイルの理論計算を用いて解析を行っている。

我々も $Tb_{43}Co_{57}$ のMCPの解析において、Tbについては、Zukowskiらと同様にBiggsらによって与えられているTb 4fのコンプトンプロファイルの理論計算を解析に用いた。一方、CoについてはKakutaniらにより実験結果が報告されている²⁰⁾。そこで、我々はCoについてはKakutaniらのMCPの実験結果を解析に用いた。

Fig. 5に、Biggsらによる理論計算²⁷⁾のTb 4fのコンプトンプロファイル(Δ)とKakutaniら²⁰⁾によるCoのコンプトンプロファイル(∇)でフィッティングした結果を実線で示す。フィッティング範囲は $2.5 p_z(\text{au}) \sim 10 p_z(\text{au})$ とした。これは、Zukowskiらの研究においても遍歴電子の寄与は $p_z(\text{au}) < 2$ の領域に現れることが知られていること^{27,28)}、 $p_z(\text{au}) > 2$ では3d, 4f電子運動量分布が化学結合

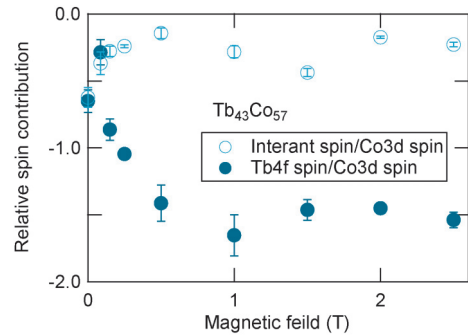


Fig. 7 Magnetic field dependence of the ratios of the Tb 4f spin component to the Co 3d spin component (closed circle) and the itinerant spin component to the Co 3d spin component (open circle) of $Tb_{43}Co_{57}$ amorphous film.

による影響を受けにくくなること¹⁹⁾ Fig. 1.9)が理由である。Tb成分とCo成分は反対を向いている。このことから、スベリ磁性体に知られているように、Tb成分とCo成分はフェリ的になっていることが分かる。フィッティング範囲外とした $2.5 p_z(\text{au})$ 以下の領域の●と実線の差異は主に遍歴電子の寄与である。

フィッティングより得られたTb成分とCo成分のスピン成分の大きさの比をプロットしたのがFig. 7の●である。値が負になっているのはTb成分とCo成分のモーメントの向きが逆になっていることによる。また、遍歴成分の寄与を表すフィッティングの差異の大きさとCo成分の大きさの比を○でプロットしている。遍歴成分とCo成分の比があまり変化しないのに比べ、Tb成分とCo成分の比は $H=0 \sim 1$ Tで大きくなりその後ほぼ一定になっていることがわかる。Fig. 6でみたSSMHとOSMHの傾きの違いとも一致する振る舞いである。これは高い磁場領域でTbのモーメントの円錐状の分布が磁場方向に揃うことに起因すると考えている³⁰⁾。全磁化曲線が開口している領域ではスピンと軌道は磁場に対して別々の振る舞いをしていいるが、閉じたあとは磁場の変化に同じように追随していると考えられる。

4.3 $Tb_{32}Fe_{55}O_{13}$ ³¹⁾

次にTb-Feに酸素ドーブした $Tb_{32}Fe_{55}O_{13}$ (膜厚 $1.7 \mu\text{m}$, 基板 $12 \mu\text{m}$ Al箔)の結果を紹介する。先に結論を紹介することになるがRE-TMの成膜時に非磁性軽元素の酸素や窒素をドーブすると系の長距離秩序が失われることが報告されている³²⁾。Fig. 8に●で示しているのが室温で印加磁場 $H=2.5$ Tでの面直方向のMCPの測定結果である。また、点線と破線はそれぞれTb成分²⁹⁾とFe成分²⁰⁾、実線はそれらを用いて $p_z(\text{au}) > 2$ の範囲でフィッティングした結果である。Tb成分とFe成分は反対向きになっている。Fig. 9に実線で全磁化曲線、●と○でSSMH, OSMHを示す³³⁾。全磁化とスピン成分の向きが

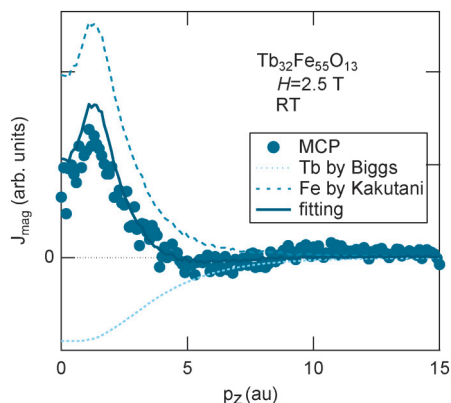


Fig. 8 Magnetic Compton profile of the $\text{Tb}_{32}\text{Fe}_{55}\text{O}_{13}$ film at room temperature where $H=2.5$ T in perpendicular direction to sample surface. Closed circles: experimental results; dotted line: experimental Compton profile of Fe reported by Kakutani *et al.*²⁰⁾; dashed line: theoretical Compton profile of the Tb 4f by Biggs *et al.*²⁹⁾; thick line: the result of least-square fitting.

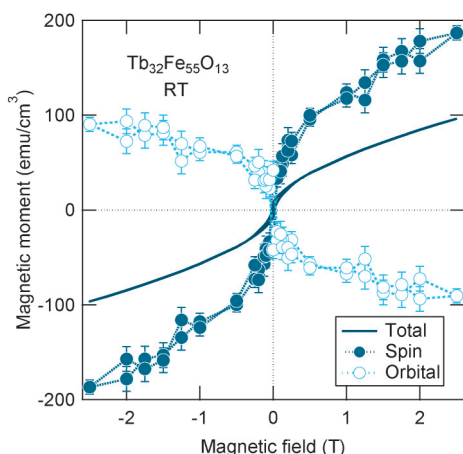


Fig. 9 Magnetization curves of the $\text{Tb}_{32}\text{Fe}_{55}\text{O}_{13}$ film at room temperature. Solid line: total magnetization curve; closed circle: spin-specific magnetization curve; open circle: orbital-specific magnetization curve.

同じになっているのに対し、OSMHの向きが逆になっている。前述の試料と異なる、この振る舞いは酸素のドーピング効果ではなく、REがややリッチになった組成比の違いによるものと考えている。

Fig. 10に軌道成分とスピン成分の比 (\diamond)、スピン成分のTb 4f成分とFe 3d成分の比 (\bullet)、スピン成分の履歴成分とFe 3d成分の比 (\circ)を示す。 $p_z(\text{au}) < 0.25$ では \diamond と \bullet が磁場の増加に伴い変化している。これはスベリ磁性に基づく元素別の振る舞いを示していると考えられる。これに対し \circ は磁場に対して特徴的な変化を示していない。これはFeでは磁場への応答が一様であることを示している。 $p_z(\text{au}) > 0.25$ ではどの比も磁場に対して似たような振る舞いをしている。これは長距離の磁気的な結合が酸素の

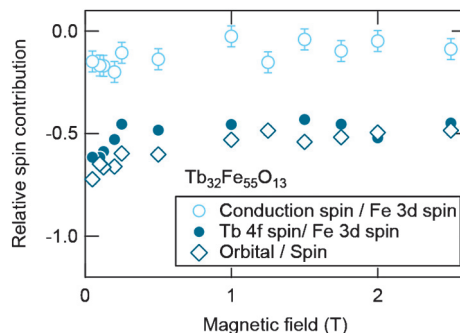


Fig. 10 The magnetic field dependence of the ratios of the magnetically active components of $\text{Tb}_{32}\text{Fe}_{55}\text{O}_{13}$ at room temperature. Solid circles: The ratio of the Tb 4f contribution to the Fe 3d contribution for MCP; open circles: the ratio of the conduction electrons to Fe 3d electrons; diamonds: the ratio of the orbital and spin moments.

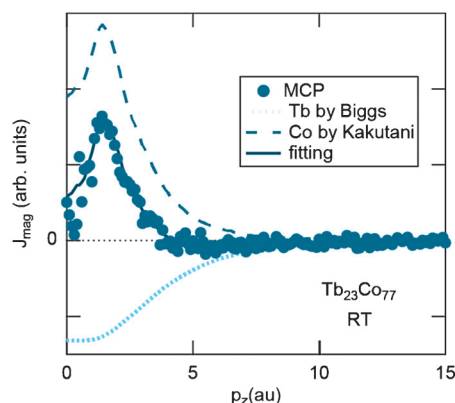


Fig. 11 MCP of the $[\text{Tb}_{23}\text{Co}_{77}(200 \text{ nm})/\text{Ti}(5 \text{ nm})]_{10}$ at $H=2.5$ T film at room temperature. Closed circles: experimental results; dotted line: experimental Compton profile of Co reported by Kakutani *et al.*²⁰⁾; dashed line: theoretical Compton profile of the Tb 4f by Biggs *et al.*²⁹⁾; thick line: the result of least-square fitting.

ドーピングにより寸断され、各元素ごとの磁場への応答があらわに表れやすくなったことによると考えられ、Bordelらの報告³²⁾と一致する。

4.4 $\text{Tb}_{23}\text{Co}_{77}$ ³⁴⁾

Fig. 11にカプトン膜上に成膜した $[\text{Tb}_{23}\text{Co}_{77}(200 \text{ nm})/\text{Ti}(5 \text{ nm})]_{10}$ の面直方向、室温でのMCP (\bullet)を示す。また、点線と破線はそれぞれTb成分²⁹⁾とCo成分²⁰⁾、実線はそれらを用いて $p_z(\text{au}) > 2$ の範囲でフィッティングした結果である。Tb成分とCo成分は反対向きになっている。この試料について前述の二つの試料と同様の解析を行い、SSMHとOSMHをプロットしたのが**Fig. 12**である。全磁化、SSMH、OSMHで保磁力が一致している様子がよく分かる。(特に述べなかったが、前述の2つの試料でも全磁化とSSMH、OSMHで保磁力は一致している。)ま

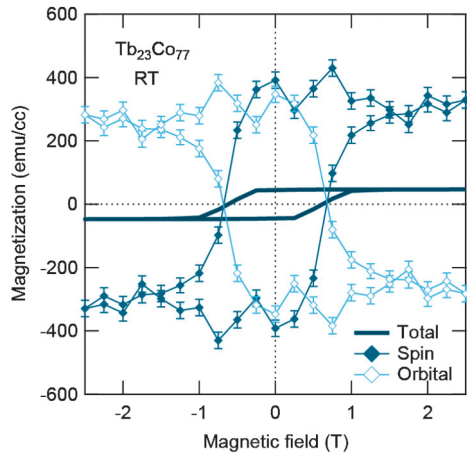


Fig. 12 The magnetization curves of of the $[\text{Tb}_{23}\text{Co}_{77}(200 \text{ nm})/\text{Ti}(5 \text{ nm})]_{10}$ film at room temperature. Solid line: total magnetization curve; closed diamond: spin-specific magnetization curve; open diamond: orbital-specific magnetization curve.

た、全磁化曲線の角型比の高い様子が SSMH と OSMH でもよく表われている。SSMH と OSMH の比をとると全磁場領域で一定であった。またフィッティングから Tb 成分と Co 成分の振る舞いについても比も全磁場領域で一定であることがわかった。これは全磁場領域でスピン成分、軌道成分、Tb 成分、Co 成分の振る舞いがよく結合していることを示していると考えられる。

RE-TM 膜はスペリ磁性による RE のモーメントの分布だけでなく、TM のモーメントの全てが面垂直成分ではなく、面内に倒れたランダムネスがある²⁶⁾。面直方向の印加磁場が大きくなるのに伴い、膜中の磁気モーメントは磁場方向に揃っていき全磁化が大きくなっていくが、このとき全領域でスピン成分、軌道成分の変化が同時に起こるとき比が一定になると考えられる。磁化の反転機構は、系の中で印加磁場の変化にともない磁化反転の核のようものができ、ただちに系全体に広がり磁化が一斉に反転する、とする核発生モデルがある。この場合でもスピン成分、軌道成分の変化が同時に起こると考えられるので、この系の磁化反転は核発生モデルで説明できると考えている。詳細な議論は今後進めていきたい。

5. まとめ

磁気コンプトン散乱は利用する X 線のエネルギーが高いため表面効果を気にせず系全体の磁性を測定できる。また、MCP の積分強度からスピン磁気モーメントを計算することができ、未知の化合物でもスピン磁気モーメントを直接求めることができる。また、アトミック描像がよく成り立つためプロファイル解析から元素別のスピンの寄与を分離できる。

本稿では、コンプトン散乱が物性測定の有効な方法であ

ることを紹介し、我々が近年進めている、磁気コンプトン散乱を利用したスピン選択、元素別、軌道選択のミクロスコピックな磁化測定の方法を 3 種類の RE-TM 膜について行った研究例を紹介した。MCP 形状のフィッティングによる成分分離から、構成元素のスピンモーメントの向きを観測した。ここでも RE と TM のそれぞれのスピン磁気モーメントがフェリ的になっている例のみであったが、もちろんフェロ的なものも観測できる。

1 つ目の常磁性成分を持つ試料では、スピン成分と軌道成分は磁化曲線が閉じたあととはよく追従して振る舞うことが観測された。また、2 つ目の試料では、非磁性元素をドーブすると長距離の磁氣的結合が阻害される事も観測された。3 つ目の試料ではスピン成分と軌道成分がよく追従して変化することが観測された。

RE-TM 膜は磁気記録材料の母物質である。磁気記録は磁化の反転を利用していることから磁化反転機構を成分別に観測できるコンプトン散乱は、磁気記録材料の開発における新しい実験手段となりえると期待している。

ここでは磁性体薄膜についてコンプトン散乱を用いた磁化過程の観測例を紹介した。コンプトン散乱は他にもフェルミ面の観測、化学結合状態の観測、など他の測定手法とは異なる視点から観測できる手法である。多くの人に試してみたい。

謝辞

本稿で紹介した実験は SPring-8・BL08W で、高輝度光科学研究センター 櫻井吉晴博士、伊藤真義博士のユーザー支援のもと行いました (2007A1360, 2008B1643, 2010B1152, 2013B1132, 2014B1121)。また、本研究の先駆けとなった実験は KEK-AR・NE1 で行いました。有用な助言を頂きました高エネルギー加速器研究機構 河田洋教授に感謝します。試料は信州大学・劉小晰教授に作製して頂きました。感謝申し上げます。他、本稿執筆にあたり協力いただいた群馬大学 鈴木宏輔博士をはじめ、松本紗也加氏、海野友哉氏、田久保翔太氏の皆様に感謝いたします。また、本研究の一部は科研費補助金 (15K04658) の助成を受けて行われました。

参考文献

- 1) 中村慶久監修：垂直磁気記録の最新技術 (エレクトロニクスシリーズ), シーエムシー出版 (2013).
- 2) 未踏科学技術協会・レアメタル研究会編：光磁気ディスク材料, 工業調査会 (1993).
- 3) J. M. Coey, J. Chappert, J. P. Rebouillat and T. S. Wang: Phys. Rev. Lett. **36**, 1061 (1976).
- 4) J. M. Coey: J. Appl. Phys. **49**, 1646 (1978).
- 5) R. C. Taylor, T. R. McGuire, J. M. Coey and A. Gangulee: J. Appl. Phys. **49**, 2885 (1978).
- 6) 橋爪弘雄, 岩住俊明編：放射光 X 線磁気分光と散乱, アイビーシー (2007).
- 7) 日本磁気学会, まぐね vol. 6 (2011) 特集「放射光による

- 磁性研究最前線」pp239-276.
- 8) 櫻井 浩：放射光 **20**, 297 (2007).
 - 9) 小泉昭久，伊藤真義，櫻井吉晴：放射光 **25**, 153 (2012).
 - 10) A. H. Compton: Phys. Rev. **21**, 483 (1923).
 - 11) A. H. Compton: Phys. Rev. **22**, 409 (1923).
 - 12) C. Kittel: Introduction to Solid State Physics 5th, John Wiley & Sons, Inc. p. 270 (1976)；キッテル：固体物理学入門第5版，丸善，p. 256 (1978).
 - 13) N. Sakai and K. Ôno: Phys. Rev. Lett. **37**, 351 (1976).
 - 14) N. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn. **56**, 2477 (1987).
 - 15) 坂井信彦，田中良和：応用物理 **61**, 226 (1992).
 - 16) M. J. Cooper, E. Zukowski, S. P. Collins, D. N. Timms, F. Itoh and H. Sakurai: J. Phys. Condens. Matter **4**, L399 (1992).
 - 17) N. Sakai: J. Appl. Cryst. **29**, 81 (1996).
 - 18) P. Carra, M. Fabrizio, G. Santoro and B. T. Thole: Phys. Rev. B **53**, R5994 (1996).
 - 19) M. J. Cooper, P. E. Mijnarends, N. Shiotani, N. Sakai and A. Bansil Ed.: "X-ray Compton Scattering" Oxford Univ. Press (2004).
 - 20) Y. Kakutani, Y. Kubo, A. Koizumi, N. Sakai, B. L. Ahuja and B. K. Sharma: J. Phys. Soc. Jpn. **72**, 599 (2003).
 - 21) M. Itou, A. Koizumi and Y. Sakurai: Appl. Phys. Lett. **102**, 082403 (2013).
 - 22) A. Agui, H. Sakurai, T. Tamura, T. Kurachi, M. Tanaka, H. Adachi and H. Kawata: J. Synchrotron. Rad. **17**, 321 (2010).
 - 23) 櫻井 浩，伊藤真義，安居院あかね：まぐね **6**, 270 (2011).
 - 24) A. Agui, S. Matsumoto, H. Sakurai, N. Tsuji, S. Homma, Y. Sakurai and M. Itou: APEX **4**, 083002 (2011).
 - 25) X. Liu, A. Morisako, H. Sakurai, M. Itou and A. Koizumi: J. Magn. Magn. Mater. **310**, 1744 (2007).
 - 26) H. Sakurai, M. Ota, X. Liu, A. Morizako, Y. Sakurai, M. Itou, T. Nagao and A. Koizumi: J. Appl. Phys. **102**, 013902 (2007).
 - 27) E. Zukowski, S. P. Collins, M J Cooper, D. N. Timms, F. Itoh, H. Sakurai, H. Kawata, Y Tanaka and A Malinowski: J. Phys. Condens. Matter **5**, 4077 (1993).
 - 28) E. Zukowski, M. J. Cooper, D. N. Timms, R. Armstrong, F. Itoh, H. Sakurai, Y. Tanaka, M. Ito, H. Kawata and R. Bateson: J. Phys. Soc. Jpn **63**, 3838 (1994).
 - 29) F. Biggs, L. B. Mendelsohn and J. B. Mann: At. Data Nucl. Tables **16**, 201 (1975).
 - 30) A. Agui, M. Mizumaki, T. Asahi, J. Sayama, K. Matsumoto, T. Morikawa, T. Matsushita, T. Osaka and Y. Miura: J. Alloy. Compd. **408-412**, 741 (2006).
 - 31) A. Agui, T. Unno, S. Matsumoto, K. Suzuki, A. Koizumi and H. Sakurai: J. Appl. Phys. **114**, 183904 (2013).
 - 32) C. Bordel, S. Pizzini, J. Vogel, K. Mackay, J. Voiron, R. M. Galéra, A. Fontane, P. Auric, J. B. Goedkoop and N. B. Brookes: Phys. Rev. B **56**, 8149 (1997).
 - 33) Y. Kubo and S. Asano: Phys. Rev. B **42**, 4431 (1990).
 - 34) 安居院 *et al.*：日本物理学会秋季大会 (2015).

著者紹介

安居院あかね

量子科学技術研究開発機構 上席研究員

E-mail: agui@spring8.or.jp

専門：X線分光物性

【略歴】

1991年お茶の水女子大学理学部物理学科卒業。1996年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了。博士（工学）。ウプサラ大学ポスドク，日本原子力研究所研究員，日本原子力研究開発機構研究主幹を経て，2016年4月から現職。

櫻井 浩

群馬大学大学院理工学府 教授

E-mail: sakurai@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，助教，教授を経て，2014年4月から現職。

Magnetization process of perpendicular magnetic films studied by magnetic Compton profile measurements

Akane AGUI Synchrotron Radiation Research Center, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology
1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5648 Japan

Hiroshi SAKURAI Faculty of Science and Technology, Division of Electronics and Informatics, Gunma University
1-5-1, Tenjin-cho, Kiryu, Gunma, 376-8515 Japan

Abstract Most popular method to evaluate magnetic property of magnetic material is total magnetization curve measurement. Here, it is a question, what dominates the behavior of a total magnetization curve. Recently, we have proposed a method to investigate microscopic magnetization process using magnetic Compton scattering which provides spin magnetic moment. In this commentary, we show that applications of magnetic Compton scattering to use microscopic magnetization curve measurement on magnetic material. Some examples will be shown from our recent results on rare earth-transition metal alloy films which are a potential candidate for magnetic recording media.