

学位申請論文

円偏光硬 X 線を用いた共鳴磁気反射率測定による
TM/FeGd/TM 三層膜 (TM=Fe, Co) の磁化過程

2008 年 3 月

奈良先端科学技術大学院大学
物質創成科学研究科

児玉 謙司

目次

省略語一覧	iii
1章 研究背景と意義および目的	1
1-1 はじめに	1
1-2 研究背景	1
1-3 研究意義	3
1-4 研究目的	5
1-5 論文の構成	7
2章 共鳴 X 線磁気反射率及び磁気円二色性実験の原理と手法	11
2-1 磁気回折法と磁気反射率法	11
2-2 円偏光共鳴 X 線磁気反射率法を用いた既往研究	13
2-3 円偏光共鳴 X 線磁気散乱の原理	15
2-4 磁気円二色性の原理	17
2-5 円偏光 X 線とヘリシティー	18
2-6 Gd-L 吸収端と Co、Fe-K 吸収端の光学遷移	20
2-7 円偏光共鳴 X 線磁気反射率の測定方法	22
2-8 磁気円二色性の測定方法	24
3章 試料作製と評価	35
3-1 真空蒸着法による TM/FeGd/TM 三層膜 (TM=Fe, Co) の作製	35
3-2 構造評価	36
3-3 磁気特性評価	38
4章 Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd 選択的磁化過程	48
4-1 Fe/FeGd/Fe 三層膜、FeGd 合金を含む数層膜の既往研究	48
4-2 測定試料	55

4-3	磁気円二色性スペクトルの測定条件と結果	56
4-4	磁気反射率プロファイルの測定条件と結果	57
4-5	磁気反射率ヒステリシスの測定条件と結果	59
4-6	Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd 磁化回転モデル	63
5章 Co/FeGd/Co 三層膜における元素選択的磁化過程		84
5-1	測定試料	84
5-2	磁気円二色性スペクトルの測定条件と結果	84
5-3	磁気反射率プロファイルの測定条件と結果	85
5-4	磁気反射率ヒステリシスの測定条件と結果	87
5-5	Co/FeGd/Co 三層膜における磁化回転モデル	88
6章 Gd 磁化回転と面内磁気異方性の関係		98
6-1	磁化容易軸と異方性エネルギー	98
6-2	磁化測定による異方性エネルギーの評価	99
6-3	Gd 磁化回転方向と異方性エネルギー	101
6-4	まとめと考察	102
7章 共鳴 X 線磁気反射率法を用いたその他の研究		110
7-1	Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜における Au の磁気分極	110
7-2	CoFe/MnIr 交換バイアス膜の Ir に誘起された磁気分極	111
7-3	今後の研究展開	113
8章 総括		121
謝辞		126

省略語一覽

GMR:	giant magneto-resistance
HDD:	hard disk device
SV:	spin valve
MRAM:	magnetoresistive random access memory
TMR:	tunnel magneto-resistance
VSM:	vibrating sample magnetometer
SQUID:	superconducting quantum interference device
MOKE:	magneto-optical Kerr effect
XMCD:	x-ray magnetic circular dichroism
RXMD:	resonant x-ray magnetic diffraction
RXMR:	resonant x-ray magnetic reflectivity
RKKY:	Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida
XAS:	x-ray absorption spectroscopy
APD:	avalanche photo diode
S/N:	signal to noise
NLSL:	National Synchrotron Light Source (United States of America)
DWBA:	distorted wave born approximation
HASYLAB:	Hamburger Synchrotronstrahlungslabor (Germany)
CCD:	charge coupled device
XANES:	x-ray absorption near-edge structure
SPring-8:	Super Photon ring-8 GeV (Japan)
XAFS:	x-ray absorption fine structure
TM:	transition metal
RHEED:	reflection high energy electron diffraction
hcp:	hexagonal close-packed
MR:	magnetoresistance
AMR:	anisotropic magnetoresistance
ESRF:	European Synchrotron Radiation Facility (France)
DW:	domain wall
bcc:	body centered cubic
PEEM:	photoemission electron microscope
XMLD:	x-ray magnetic linear dichroism

1 章 研究背景と意義および目的

1-1 はじめに

巨大磁気抵抗 (GMR) 効果が発見され [1-1,2]20 年近く経つ現在、その磁気結合状態の理解が進み、GMR の基本原理を応用したハードディスク (HDD) のスピナルブ (SV) ヘッド、磁気メモリ (MRAM) などの磁気デバイスは広く実用に供されている。近年では非磁性層に絶縁体を利用したトンネル磁気抵抗 (TMR) 効果を用いた SV ヘッドが実用されるようになった。磁気デバイスの主要な部分は、保護層やバッファ層に埋もれている複数の元素からなる数層のヘテロ構造である。例えば GMR、TMR-SV デバイスは強磁性体のフリー層、非磁性体または絶縁体のスペーサ層、強磁性体のピン層、反強磁性体のピニング層からなっている (図 1-1)。この GMR、TMR-SV はフリー層の磁場に対する磁気配列の変化により生じる電気伝導度の変化を利用して信号処理を行う素子である。そのためフリー層の磁化過程の詳細について知ることはデバイス性能の評価を行う上で必須であり、それと同様にフリー層の磁化過程に影響するピン層、ピニング層の交換結合状態、非磁性層に誘起された磁気分極構造を知ること重要である。

SV 構造を細分化して考えた場合、ピン層/ピニング層は交換結合膜である。フリー層/スペーサ層/ピン層は間接交換結合膜である。その交換結合、間接交換結合は、デバイス構造そのものを対象試料にして研究される必要がある。その理由は、例えば同じ交換結合を有する系でも単純な二層膜の結合状態と、デバイス構造のように複数の層からなる系の埋もれた二層部分の結合状態は厳密には異なっているからである。

デバイス材料開発の観点から、SV 構造のような数層のヘテロ構造の埋もれた層の磁化過程、磁気構造について厳密に明らかにすることができる研究手法が必要とされていた。

1-2 研究背景

特定の外部磁場における磁気構造を評価すること、外部磁場を掃引した際の磁化過程を評価することの 2 点は、磁性研究において最も基礎的で重要な項目である。薄膜磁性分野においても磁気構造、磁化過程につ

いて、様々な実験手法を用いて研究が行われてきた。しかし従来の手法を用いて、基板上に作られた数層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁化過程、磁気構造に関する知見を得ることは、以下に示す問題点により困難であった。

薄膜の磁化過程を調べる従来手法の問題点

薄膜の磁化過程研究に用いる実験法には振動試料型磁力計 (VSM)、超伝導磁束量子干渉磁束計 (SQUID) を用いた測定が挙げられる。一般的な VSM では $10^{-3} \sim 10^2$ emu、SQUID では $10^{-7} \sim 10^0$ emu の磁化測定範囲を持っている [1-3]。これらは薄膜構造全体の磁化の応答を検出する手法としては有力であるが、特定の層のみ、特定の元素のみを選択した磁化過程を知ることができない。磁気光学効果 (MOKE) による測定は、表面層に敏感であるが、埋もれた層の磁化の情報を得ることができない [1-3]。

一方、X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定は注目元素の磁気情報を選択的に得る手法で、その磁場依存性から元素選択ヒステリシスを得ることが可能である。XMCD は吸収測定を応用したものであり、埋もれた層を測定対象にする場合、透過能の低い軟 X 線ではプローブ深さがおおよそ 10 nm に制限されるために、数 μm の薄膜を十分透過する硬 X 線の利用が必須である。硬 X 線を利用した XMCD 測定は、一般的には吸収測定の基本原理に従った透過法が適応されるが、蛍光法、転換電子収量法を適応することも可能である [1-4]。透過法での測定では X 線が薄膜、基板を透過する必要がある。よってポリイミドフィルムなどの X 線吸収率の低い基板を用いて実験を行う必要がある。しかし Si などの結晶基板上に作られた薄膜の場合、硬 X 線を用いた場合でも基板による吸収が大きいため、XMCD ヒステリシス測定を行うことができない。蛍光法は、X 線吸収に伴い生じた内殻空孔への外殻からの電子遷移により発生する蛍光 X 線強度が注目元素の吸収量にほぼ比例することを利用する手法である。蛍光法は、透過法では困難な結晶基板上の薄膜の XMCD 測定を原理的に可能にする。しかし磁性元素が希薄な場合の S/N は透過法に及ばず、S/N の大きいシグナルを得るためには自己吸収、妨害蛍光、散乱 X 線 (弾性、非弾性)、特性 X 線を回避する条件を注意深く選定する必要があるため困難な実験を要する。転換電子収量法は X 線吸収に伴い生じたオージェ電子強度が注目元素の吸収量にほぼ比例することを利用する手法である。しかし発生するオージェ電子の試料内での飛距離は短く、表面領域に敏

感となる。このような理由から、従来手法では基板上に作られた数層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁化過程を直接的に明らかにすることが困難であった。

薄膜の磁気構造を調べる従来手法の問題点

薄膜の磁気構造研究に用いる実験法には中性子磁気回折、X線磁気回折が挙げられる。なかでも第2章で詳しく述べる、硬X線を用いた円偏光共鳴磁気回折(RXMD)は人工格子の元素選択的な磁気構造を明らかにする手法として注目されており、磁性層および非磁性層中に誘起された磁気分極構造を明らかにした数々の研究が報告されている。近年では、IshimatsuらによるFe/Gd多層膜のGd層内の磁気分極構造の温度変化の研究[1-5]で、補償温度前後でのGd磁気構造変化の詳細が明らかになった。HosoitoらによるFe/Cu多層膜のCu層の磁気分極の研究[1-6]で、Feに接したCu層の界面付近に誘起磁気分極が集中していることが明らかになった。OhkochiらによるFe/Au多層膜のAu層の磁気分極の研究[1-7]で、Fe層に接したAu層の内部まで磁気分極が存在し、界面でやや大きく誘起されることが明らかになった。このようにRXMDは多層膜の層内の磁気分極構造を知る有力な研究手法である。しかしRXMDは小角領域に多層膜の周期に起因するブラッグ回折をもつ人工格子に適応可能な手法であり、周期構造に起因するブラッグ回折が生じない数層膜には適応できない。そのために、これまでは基板上に作られた数層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁気構造を直接的に明らかにすることができなかった。

1-3 研究意義

本研究で提案する共鳴磁気反射率法(RXMR)は、基板上に作られた数層構造の薄膜の表面層、埋もれた層の元素選択的な磁気構造、磁化過程を明らかにすることが原理上期待される。本手法は基礎的な磁気物性研究のみならず実用的な磁性材料開発に関する研究の発展に大きく貢献すると考える。理由を以下に示す。

薄膜磁性の重要なトピックに交換結合、間接交換結合が挙げられる。交換結合、間接交換結合を発生する最もシンプルな系は二層膜および三層膜である。よって二層、三層膜は磁気結合状態を研究するための最も好ましいモデル構造であると言える。

興味深い交換結合状態を示す二層、三層膜には交換スプリング磁石 [1-8,9]、人工フェリ磁性体 [1-10,11]、交換バイアス膜 [1-12~15]などがある。交換スプリング磁石とは飽和磁化の大きな軟磁性、保磁力が大きい硬磁性の性質を持った強磁性から成る FeNi/SmCo などの二層膜で、高いエネルギー積 (BH 特性) を実現する。人工フェリ磁性体とは強磁性/フェリ磁性/強磁性からなる、Fe/FeGd/Fe などの三層膜で、強磁性層磁化とフェリ磁性層の正味磁化が反平行結合し、系全体の磁化過程がスピントロップのような挙動を示す。交換バイアス膜とは強磁性/反強磁性からなる Co/CoO などの二層膜で、通常磁場印加方向に追従する強磁性スピンの界面の反強磁性スピンの影響で一方向に固着され、ヒステリシス曲線が横シフトする特徴を持つ。いずれの二層膜、三層膜においても結合状態、磁気特性の詳細を明らかにするためには界面の磁気構造や元素選択磁化過程の理解は重要である。

磁性/非磁性からなる間接交換結合膜は Co/Cu 系を始め、様々な多層膜で研究されている [1-16,17]。それらの系で生じる非磁性層の膜厚による交換結合定数の振動を説明するモデルとして、RKKY 理論の拡張 [1-18]、量子井戸状態の形成 [1-19]などが提唱され、最近では、交換結合定数の振動と、先に述べた RXMD 実験によって決定された非磁性層の磁気分極の深さ分布との関係についての考察が進められている。しかし単純な三層膜を用いて磁気分極の存在を観測し、その分布を決定した研究はこれまでにほとんど報告されていない。磁気分極構造の詳細を理解するために、間接交換結合膜の基本構造である三層膜から非磁性層の磁気分極分布の詳細を明らかにすることが期待されている。

問題点のところでも述べたように、結晶基板上に作られた交換結合膜や間接交換結合膜の埋もれた層について知ることはできない。よって透過実験用のフィルムなどに結晶基板上の薄膜と同じ構造を作り、XMCD ヒステリシス測定を行う必要があった。この点に厳密な磁化過程を知る上で致命的な問題がある。磁気結合状態は磁性層間の相互作用に加えて、膜の結晶構造、ラフネスに大きく影響を受ける。基板の違いはほとんどの場合、薄膜構造に差異を与える。基板表面の結晶格子面に整合する面で結晶成長するエピタキシャル成長が代表的な例である。異なる基板を使うことで、本来知りたい磁化過程が見えなくなるといってよい。保磁

力、交換磁場、飽和磁場などの磁化過程の詳細を厳密に知るためには、本来あるべき基板上の二層、三層膜からダイレクトに元素選択磁気ヒステリシス測定を行うことが必要不可欠である。共鳴磁気反射率ヒステリシス測定は X 線反射強度の磁場依存性を測定するので基板の厚さ、種類に関してほとんど制約がない。そのため原理的には任意の基板上の二層、三層膜からダイレクトに元素選択磁気ヒステリシス測定を行うことができる。

結晶基板上に作られた交換結合、間接交換結合膜の元素選択磁気構造を知るには RXMD 実験のために人工格子の作製が必須であった。積層回数を重ねるにつれ、界面の数が多くなる。そのためラフネスの蓄積が生じる。そのため人工格子の単位構造と二層、三層膜を比較しても構造は異なっている。RXMD 実験で求めた磁気構造は人工格子の平均磁気構造であって、二層膜、三層膜の磁気構造と厳密には比較することはできない。界面の磁気結合の大きさ、距離、向きなどを厳密に知るためには、基板上の二層、三層膜からダイレクトに元素選択磁気構造を知ることが必要不可欠である。RXMR 測定は鏡面反射率から磁気構造を決定するため、人工格子、二層膜、三層膜を問わず元素選択磁気構造の決定が原理的に可能である。

RXMR 法によって数層の薄膜構造の埋もれた層の元素選択的な磁性を研究することは、基礎的な磁気物性の理解を深め、実用磁性材料開発の指針を与えることにつながると期待される。

1-4 研究目的

本研究の目的は二つある。一つ目は薄膜磁性の新規な研究手法である RXMR 法の提案、二つ目は RXMR 法を適応した薄膜磁性に関する研究である。それぞれについて説明する。

第一の目的

本研究は RXMR 法を興味ある様々な磁気物性を示す二層膜、三層膜に適応して、原理的に可能であると考えている以下の測定

- ・ RXMR 強度の磁場依存性を利用したヒステリシス測定である、RXMR ヒステリシス測定によって基板上に作られた二層、三層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁化過程を得る。
- ・ RXMR 強度の散乱角度依存測定である、RXMR プロファイル測定によって基板上に作られた二層、三層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁気構造を反映した反射率プロファイルを得る。

について実験的に測定可能であるか、また得られたデータを検証し、従来手法に対する長所、短所を明確にすることを通じて、RXMR 法が基礎的磁気物性および実用材料開発に対して意義のある磁性研究手法になりうるかを判定することを第一の目的とする。

第二の目的

以下に示す ~ の二層膜、三層膜について、磁化測定、XMCD による従来の磁性研究手法から得られる情報と、RXMR 法による元素選択的ヒステリシス、反射率プロファイルによって得られると期待される情報をもとにして、総合的に考察をおこない、従来の研究手法のみでは知ることが困難であった基板上に作られた二層、三層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁化過程、磁気分極構造の詳細について議論し、明らかにすることが第二の目的である。

Fe/FeGd/Fe 三層膜

Co/FeGd/Co 三層膜

Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜

CoFe/MnIr 二層膜

の人工フェリ磁性体である Fe/FeGd/Fe 三層膜の研究では Fe/FeGd/Fe 三層膜における FeGd 合金層の Gd 磁化の磁気反射率ヒステリシスを測定し、その結果から導かれる試料面内における磁場に対する Gd 磁化の挙動を、磁化測定と XMCD 測定による実験結果とあわせて議論し明らかにする。Fe/FeGd/Fe 三層膜について、これまでに Motokawa と Dohnomae らが研究を行っている [1-10,11]。詳細は後の章で述べるが、彼らは仮想

FeGd 原子を考え、計算によって FeGd 層内の磁壁の回転モデルを提案した。彼らのモデルでは、FeGd 層の Fe 磁気モーメントと Gd 磁気モーメントは常に反平行状態を保つことが仮定されている。本研究では Gd 磁化のみに着目し、彼らの回転モデルと比較する。また、Gd 磁化回転方向を決定付ける要因について明らかにする。

の人工フェリ磁性体である、Co/FeGd/Co 三層膜の研究では、上下の Co 層と、FeGd 合金層の Fe、Gd について注目する。それぞれの元素の磁化の磁気反射率ヒステリシスを測定し、試料面内における磁場に対する挙動について磁化測定、XMCD 測定による実験結果とあわせて議論し、明らかにする。この研究において人工フェリ磁性を形成する全要素の磁化過程が明らかになると期待される。なお Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd と Co/FeGd/Co 三層膜における Gd の試料面内における挙動についての比較をおこない、その違いについて明らかにする。

の Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜についての研究では非磁性 Au に注目した磁気反射率プロファイル測定を行った結果について述べる。Au 層内の磁気分極を明らかにする試みは、先に述べた Ohkochi らの RXMD による Fe/Au 多層膜の研究のほか、¹¹⁹Sn メスバウアー分光による TM/Au(Sn)多層膜 (TM=Fe,Co,Ni) の研究 [1-20]がある。その結果から界面付近の内部磁場は大きく、内部でもゼロでない値が観測されている。磁性層が Au 層の片側だけにある二層膜と、両側にある三層膜では Au 層に誘起される分極構造に違いがあると考えられる。その違いに起因する RXMR プロファイルが得られるかに注目する。

の CoFe/MnIr 二層膜の研究では、反強磁性 MnIr 合金層と強磁性 CoFe 層界面における Ir に誘起された磁気分極構造について磁気反射率プロファイルの解析から明らかにする。また Co と Ir に注目した磁気反射率ヒステリシス測定を行い、磁化過程の詳細について明らかにする。CoFe/MnIr 二層膜についてこれまでに多くの研究がなされている。しかしそれらは強磁性層と Mn に対する研究 [1-21,22]であり、Ir について報告された例は無い。

1-5 論文の構成

第 2 章では本研究で提案する RXMR 法について RXMD 法と比較して説明した後、原理、測定手法について述べる。本研究では各二層膜、三層

膜の磁性研究において議論を深めるために XMCD 実験を行っている。よって XMCD の原理、測定手法についても同章で紹介する。またこれまでに数例行われている RXMR 法を用いた既往研究について紹介する。

第 3 章では FeGd 単層膜、Fe/FeGd/Fe 三層膜などに関する既往研究の紹介を行ったあと、本研究で用いる Fe/FeGd/Fe 三層膜、Co/FeGd/Co 三層膜の試料作製、構造および磁性の評価を行った結果について述べる。

第 4 章では Fe/FeGd/Fe 三層膜の Gd の磁化過程に関して、第 5 章には Co/FeGd/Co 三層膜の各元素の磁化過程に関して述べている。

第 6 章では Fe/FeGd/Fe 三層膜の Gd と Co/FeGd/Co の三層膜の Gd の磁化過程の違いについて試料面内の磁気異方性エネルギーの分布形状、印加磁場方向から考察を行っている。

第 7 章では Fe/Au 二層膜および Fe/Au/Fe 三層膜の磁気反射率プロファイル測定結果、CoFe/MnIr 二層膜の Co、Ir 選択磁化過程、界面 Ir の磁気構造について述べる。また今後の研究展開についても述べる。

第 8 章で本研究の総括を行う。

1 章 参考文献

- [1-1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petrpf, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas: Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [1-2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn: Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [1-3] 近桂一郎、安岡弘司編：実験物理学講座 6 磁気測定（丸善 1999）。
- [1-4] 太田俊明編：X線吸収分光法（アイピーシー 2002）。
- [1-5] N. Ishimatsu, H. Hashizume, S. Hamada, N. Hosoito, C. S. Nelson, C. T. Venkataraman, G. Srajer, and J. C. Lang: Phys. Rev. B **60**, 9596 (1999).
- [1-6] N. Hosoito, K. Ishibashi, T. Ohkochi, K. Kodama and Y. Hayasaki: J. Phys. Chem. Solids. **68**, 2153 (2007).
- [1-7] T. Ohkochi, K. Mibu and N. Hosoito: J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 104707 (2006).
- [1-8] K. Mibu, T. Nagahama and T. Shinjo: J. Magn. Magn. Mater. **163**, 75

(1996).

[1-9] Eric E. Fullerton, J. S. Jiang, M. Grimsditch, C. H. Sowers, and S. D. Bader: Phys. Rev. B **58**, 12193 (1998).

[1-10] M. Motokawa and H. Dohnomae: J. Phys. Soc. Jpn. **60** 1355 (1991).

[1-11] H. Dohnomae: J. Phys. Soc. Jpn. **60** 759 (1993).

[1-12] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean: Phys. Rev. **102** 1413 (1957).

[1-13] A.P. Malozemoff: Phys. Rev. B **35**, 3679 (1987).

[1-14] Mauri, H.C. Siegmann, P.S. Bagus and E. Kay: J. Appl. Phys. **62**, 3047 (1987).

[1-15] N.C. Koon: Phys. Rev. Lett. **78**, 4865 (1997).

[1-16] S. S. P. Parkin, N. More and K. P. Roche: Phys. Rev. Lett. **64**, 2304 (1990).

[1-17] S. S. Parkin, R. Bhadra, and K. P. Roche: Phys. Rev. Lett. **66**, 2152 (1991).

[1-18] P. Bruno and C. Chappert: Phys. Rev. Lett. **67**, 1602 (1991).

[1-19] J. E. Ortega and F. J. Himpsel: Phys. Rev. Lett. **69**, 844 (1992).

[1-20] T. Emoto, N. Hosoito and T. Shinjo: J. Magn. Magn. Mater. **189** 136 (1998).

[1-21] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A.T. Young, M. Carey, and J. Stöhr: Phys. Rev. Lett. **91** 017203 (2003).

[1-22] M. Tsunoda, S. Yoshitaki, Y. Ashizawa C. Mitsumata, T. Nakamura, H. Osawa, and T. Hirono, D. Y. Kim and M. Takahashi: J. Appl. Phys. **101** 09E510 (2007).

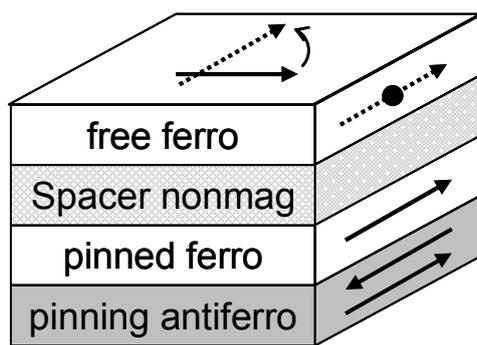


図 1-1. スピンバルブ構造

free 層の磁化配列の変化により、電気伝導度が変わる。

2章 共鳴 X 線磁気反射率および磁気円二色性実験の原理と手法

2-1 磁気回折法と磁気反射率法

単層、数層、多層の区別なく、その密度、厚さ、表面界面ラフネスを評価する方法に X 線反射率法がある。X 線反射率とは $2\theta=0\sim 10^\circ$ 付近の角度領域の鏡面反射強度プロファイルのことをいう。基板上の薄膜は界面を有するため、電荷散乱振幅に不連続が生じる。そのため、X 線は界面において多重反射による干渉を起こし、その結果として反射率は臨界角を境に振動しながら減少する。複数の界面を有する数層膜、多層膜の場合は、各界面での X 線の干渉の重ね合わせにより、振動周期を持った反射率が与えられる。Parratt の反射率計算の研究 [2-1]以降、数層膜、多層膜の密度、厚さ、ラフネスを求める薄膜の構造研究が盛んになった。

元素 A、B がそれぞれ一定の厚さを保ったままで A/B/A/B と繰り返される人工格子では、反射率プロファイルに強い回折が一定角度間隔に生じる。これは人工格子ブラッグ回折といい、A/B 繰り返し構造の平均的な電荷散乱振幅の膜深さ方向変調のフーリエ成分に相当するものである。 $2\theta=20\sim 100^\circ$ の大きな領域で観測される結晶構造に起因するブラッグ回折とは異なる。人工格子ブラッグ部分以外の反射率には、人工格子の繰り返し部分以外のバッファ層、キャップ層などに起因する振動が反映される。

図 2-1 に Hosoi らによって測定、解析された Fe/Cu 多層膜の Cu- K_α 近傍 (8983.5 eV) での反射率プロファイル [2-2]を示す。白丸が実験、実線が Parratt の方法によって計算されたプロファイルである。計算に用いる 8983.5 eV の Fe の電荷散乱振幅は Cromer-Lieberman の理論式 [2-3]の値を利用し、Cu の電荷散乱振幅は X 線吸収スペクトル (XAS) から実験的に決定された値が利用された。それらの電荷散乱振幅の値を用い、Fe : $18.9\pm 0.3 \text{ \AA}$ 、Cu : $15.9\pm 0.3 \text{ \AA}$ の繰り返し周期構造が求められた。このように反射率のブラッグ回折に電荷散乱振幅の繰り返し周期構造の情報が反映されるのと同様に、磁気散乱振幅の繰り返し周期構造の情報もブラッグ回折に含まれている。そのブラッグ回折から磁気散乱振幅の変調に関する情報を取り出す手法が RXMD である。RXMD は着目元素 (磁気構造を解明したい層の構成元素) の吸収端近傍の共鳴波長を持った円偏光 X 線を人工格子試料に入射し、ヘリシティーの違いによる散乱強度差により与えられる磁気ブラッグ回折を測定する。図 2-2 (a) に同じく Hosoi らによって測定、解析された Fe/Cu 多層膜の Fe-K 端近傍 (7112.5 eV) で

の RXMD [2-2]を示す。図中の 1~3rd の回折は図 2-1 の回折 1~3rd と同じ q_z で測定されている。図 2-2 (a) の実線は図 2-2 (b) に示す Fe 層の磁気散乱振幅の分布モデルから計算された磁気回折である。分布モデルの横軸の 18.9 Å は電荷反射率から求められた Fe 層の 1 層の厚みに相当し、縦軸は磁気散乱振幅の実数部である。1 層当たりの磁気散乱振幅は XMCD から求められ、Fe 原子層に分布する割合をモデルとして与える。このモデルは Cu と接する Fe の界面層の磁気散乱振幅が減少することを示している。このように RXMD は着目層の磁気散乱振幅を原子層単位で精密に決定することができる手法である。

一方、人工格子のように周期構造を持たない数層膜では、RXMD を適応することができない。しかし反射率から数層膜の化学構造の決定が可能であることから、着目元素の吸収端近傍の共鳴波長を持った円偏光 X 線を数層膜試料に入射し、ヘリシティー差強度により与えられる磁気反射率を測定することで、磁気散乱振幅の変調に関する情報を取り出すことが原理的に可能であると考えられる。この手法が RXMR である。RXMR 測定がこれまでに行われなかった主な理由は、十分な測定精度でヘリシティー差強度を測定することが現実的時間内で困難であったためである。RXMD の場合 1 つのブラッグ回折を測定する場合、ピーク位置を中心に 2θ にして $\pm 0.3^\circ$ 程度のスキャンを行う。3 つのブラッグ回折を測定する場合では 1.8° の区間を測定することになる。図 2-2 (a) を例にとると、3rd ブラッグは 9° 近くに存在するが、磁気反射率で同じ q_z まで到達するには 0° を始点と考えると、約 5 倍の角度領域を測定しなければならない。また比較的角度の大きい場所では反射率強度が小さくなる。そのため、電荷散乱強度の僅か数%程度の磁気散乱を有効なシグナルとして検出するために長時間のカウント蓄積が必要になる。また、反射率は一般に対数でプロットされることから理解できるように強度変化が大きい。そのため適正なカウント内で計数できるよう頻りにアテナータを変える必要が生じ、測定に時間を要するだけでなく、吸収量補正に伴う測定誤差が生じるという不都合があった。これら諸問題を克服するためには、広いダイナミックレンジを有する検出器を用いた高計数率測定システムの実現が必要であった。Hayasaki らは、おおよそ 3×10^6 cps まで線形性を有する APD 検出器と高速フォトンカウンターを用いて RXMD 測定を行い、従来のシンチレーターとフォトマルチプライヤーからなる計数系に比べ測定時間を 1/10 程度に短縮することに成功し [2-4]、RXMR 測定を現実的時間で測定できる可能性が生まれた。数層膜から磁気散乱振幅の深さ変調を表す RXMR を得ることができれば、電荷構造が単純であるため多層膜

で生じる界面ラフネスの蓄積や膜厚の不均一などの不確定要素に悩まされずに Parratt の方法に基づいた磁気構造解析が可能になることが期待される。また微小角領域において (2θ が小さい場合)、RXMR 強度は膜面内の注目元素の磁化ベクトルの大きさに比例する。よって、RXMR の磁場依存性から元素選択磁気ヒステリシス測定を行うことが理論的には可能であると考えられていた。この手法が RXMR ヒステリシス測定である。実際に測定を行うためには、磁場印加に伴う磁化ベクトルの変化による微小な磁気散乱強度の変化を捉える必要があり、S/N 比の改善が求められていた。Hayasaki らによる測定システムの高計数率化によって、短時間に大量の光子を蓄積できるようになり、S/N が従来と比較して一桁程度改善した。そのため RXMR ヒステリシスを精度よく測定できる可能性が生まれた。このように RXMR 法による磁気構造解析、RXMR ヒステリシスによる元素選択ヒステリシス測定は、円偏光硬 X 線を用いた磁気散乱測定技術の発展により実現の可能性が高まった。

2-2 円偏光共鳴 X 線磁気反射率法を用いた既往研究

これまでに報告された共鳴 X 線磁気反射率法を用いた数層膜の磁気構造および元素選択磁化過程の研究はわずかである。以下に紹介する。

Py/CoO 交換バイアス膜の界面の磁気構造 [2-5]

強磁性/反強磁性界面で生じる興味深い磁気結合に交換バイアス効果がある。この効果をスピバルブ構造のピン止め層に利用したリードヘッド素子は既に実用されており、現在は TMR 素子にも応用されている。バイアス効果の起源は反強磁性層に非補償スピが存在し、磁化反転に対して反応せず方向を保持することによって引き起こされるとされてきた。しかし近年、非補償スピにも磁化反転に追従する成分があることが判明し、その界面の元素選択磁化反転や深さ方向の磁気構造に興味もたれている。Roy らは軟 X 線磁気反射率法による強磁性 Py/反強磁性 CoO 交換バイアス二層膜 (Py:Ni₈₀Fe₂₀) の界面の Ni、Co の磁気構造について報告している。

磁気反射率測定は NSLS のビームライン X13A で行われ、Ni- L_3 端近傍 (851.4 eV)、Co- L_3 端近傍 (777 eV) で測定された。図 2-3 は磁場を ± 350

Oe 印加し測定した磁気反射率プロファイルである。磁場はバイアス効果を考慮しても飽和するように設定されている。零でないシグナルは Ni においては予期されるものであるが、反強磁性体である CoO についても確認され、強磁性成分を持つことを示している。プロファイル形状から定量的な評価を行い、深さ構造について明らかにするため、磁気反射率のオフセット成分を差し引いた上で DWBA による解析を行っている [2-6]。その結果、図 2-4 に示す磁気界面モデルが得られ、界面約 1 nm の領域で CoO が磁気分極を持つことが明らかになった。縦軸の δ_{mag} は X 線の磁気に関する屈折率の分散項を示している。

また彼らは図 2-3 (b) に示すように散乱角を固定し、磁気散乱強度の磁場依存性を測定することで、Ni、Co 元素選択的磁気ヒステリシスを得ている。両ヒステリシスの保磁力はほぼ等しく、バイアス効果によるヒステリシスの横シフトが確認されないことが示されている。

Pt/Co 二層膜における Pt に誘起された磁気分極 [2-7]

薄膜構造における垂直磁化安定性の向上は HDD、MRAM の高密度化の重要技術であるが、Pt/Co 系は高い垂直磁気異方性を示すことから実用化研究が進められている系の一つである。Geissler らは界面の Pt に誘起された磁気分極構造を明らかにするために、Pt/Co 二層膜の硬 X 線 Pt- L_3 端磁気反射率測定を行っている。測定は HASYLAB のビームライン A1 と BW4 で行われた。図 2-5 は測定された電荷反射率と、磁気反射率の結果である。Pt/Co 界面は約 2nm の組成変調部分が仮定され、電荷構造が求められた。Pt 原子は $0.21\mu_B$ の磁気モーメントが誘起され、界面から Pt 側に侵入長 0.3nm でモーメントが減衰する図 2-6 の磁気構造モデルで測定データが再現されている。

面内の磁気相関距離に関する研究

、 の研究は深さ方向の磁気構造を得る手法であるが、面内の磁気構造（ドメイン構造）について着目した研究もある。共鳴磁気ロッキングカーブを測定し、ドメイン縞の周期構造を評価した例 [2-8]や CCD 検出器を用いて広範囲の磁気散漫散乱を測定し、相関距離を議論した例が報告されている [2-9]。

2-3 円偏光共鳴 X 線磁気散乱の原理

X 線は電子の電荷による散乱（トムソン散乱）だけでなく、磁気モーメントによっても散乱を受ける。X 線と磁気モーメントの相互作用は非常に弱くエネルギー E を持った X 線による磁気散乱振幅と電荷散乱振幅の比は以下のように表される [2-10]。

$$\frac{f_{mag}}{f_{charge}} \approx \left(\frac{E}{mc^2} \right) \frac{N_m}{N} \quad (2-1)$$

(N_m : 原子中の磁性電子数、 N : 全電子数)

たとえば 10 keV の X 線を用いると Fe 原子の磁気散乱振幅は電荷の 2×10^{-3} 程度になる（強度にして 10^{-6} のオーダー）。X 線のエネルギーが磁性原子の吸収端に近い場合、トムソン散乱に加えて、内殻電子が非占有準位に励起される中間励起を伴う共鳴散乱（共鳴交換散乱）が生じる。X 線の全散乱振幅は Thomson 散乱振幅、非共鳴磁気散乱振幅、共鳴電荷散乱振幅、共鳴磁気散乱振幅の和として表される。Hannon らは、全散乱振幅を次式のように与えた（非共鳴磁気散乱振幅は小さいので無視している） [2-12]。

$$f = r_e f_0 (\mathbf{e}_f^* \cdot \mathbf{e}_i) + \left(\frac{3}{4\pi k} \right) \{ (\mathbf{e}_f^* \cdot \mathbf{e}_i) [F_{+1}^1(E) + F_{-1}^1(E)] \\ + i(\mathbf{e}_f^* \times \mathbf{e}_i) \cdot \mathbf{m} [F_{+1}^1(E) - F_{-1}^1(E)] + (\mathbf{e}_f^* \cdot \mathbf{m})(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{m}) [2F_0^1(E) - F_{+1}^1(E) - F_{-1}^1(E)] \} \quad (2-2)$$

(r_e : 古典電子半径、 f_0 : 原子番号、 k : X 線の波数、 \mathbf{e}_i 、 \mathbf{e}_f : 入射、散乱 X 線の単位偏極ベクトル、 \mathbf{m} : 磁気モーメントの単位ベクトル、 F_M^L : 軌道角運動量量子数の変化が L 、磁気量子数の変化が M である遷移強度)

ここでは電気双極子遷移（E1 遷移）のみを考え、四極子遷移（E2）は考慮していない（まれに希土類元素においては四重極遷移（E2）を考慮する必要がある場合もある） [2-13,14]。第一項は Thomson 散乱である。第二項は磁気モーメントに関係しない電荷散乱の異常分散項である。第三項は磁気モーメントに依存する円偏光磁気散乱の異常分散項である。また第四項は直線偏光磁気散乱を表す。円偏光共鳴 X 線磁気散乱を考える上で重要なのは二、三項の共鳴過程の異常分散項である。その双極子遷

移エネルギー準位は図 2-7 のように示される。電荷散乱の異常分散項の $[F_{+1}^1 + F_{-1}^1]$ は、左右円偏光による $M \pm 1$ 遷移強度が常に一定である。第三項の $[F_{+1}^1 - F_{-1}^1]$ は遷移先のエネルギーが分裂によって遷移強度に差が生まれる共鳴磁気散乱を表している。式 2-2 の誘電率テンソルを以下に示す散乱振幅に置き換える。

$$r_e f_0 \rightarrow f_c^0$$

$$\frac{3}{4\pi k} [F_{+1}^1 + F_{-1}^1] \rightarrow f_c' - i f_c'' \quad (2-3)$$

$$\frac{3}{4\pi k} [F_{+1}^1 - F_{-1}^1] \rightarrow f_m' - i f_m''$$

式 2-3 の関係を用いると第一、二、三項の散乱振幅の和は次のように書くことができる。

$$f = (\mathbf{e}_f^* \cdot \mathbf{e}_i)(f_c^0 + f_c' - i f_c'') + i(\mathbf{e}_f^* \times \mathbf{e}_i) \cdot \mathbf{m}(f_m' - i f_m'') \quad (2-4)$$

(f_c^0 : Thomson 散乱振幅、 f_c' 、 f_c'' : 共鳴電荷散乱振幅の実数部、虚数部、 f_m' 、 f_m'' : 共鳴磁気散乱振幅の実数部、虚数部)

電荷構造因子、磁気構造因子は

$$F_c(\mathbf{q}) = \sum_j^{all\ atom} (f_{c_j}^0 + f_{c_j}' - i f_{c_j}'') \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) \quad (2-5)$$

$$\mathbf{F}_m(\mathbf{q}) = \sum_j^{mag\ atom} \mathbf{m}_j (f_{m_j}' - i f_{m_j}'') \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j)$$

(\mathbf{q} : X 線の散乱ベクトル、 \mathbf{r} : 原子の位置ベクトル)

で表される。電荷構造因子については全ての原子について、磁気構造因子については共鳴条件にある磁性原子について足し合わせる。入射 X 線の円偏光状態を ν 、散乱 X 線の円偏光状態を ν' とすると全構造因子は

$$F^{\nu\nu'} = (\mathbf{e}_{\nu'}^* \cdot \mathbf{e}_\nu) F_c(\mathbf{q}) + i(\mathbf{e}_{\nu'}^* \times \mathbf{e}_\nu) \cdot \mathbf{F}_m(\mathbf{q}) \quad (2-6)$$

となる。散乱強度は構造因子の絶対値の二乗に比例する。+ヘリシティー円偏光を入射したときの散乱強度は、±ヘリシティーの散乱を考え

$$I^+(\mathbf{q}) = |F^{+,+1}(\mathbf{q})|^2 + |F^{-,+,1}(\mathbf{q})|^2 \quad (2-7)$$

となる。-ヘリシティー円偏光を入射した場合の散乱強度も同様に計算できる。差強度を計算すると次式を得る [2-15]。

$$I^+(\mathbf{q}) - I^-(\mathbf{q}) = -(\mathbf{k} + \mathbf{k}' \cos 2\theta) \cdot [F_c^*(\mathbf{q})F_m(\mathbf{q}) + F_c(\mathbf{q})F_m^*(\mathbf{q})] \quad (2-8)$$

(k 、 k' : 入射、散乱 X 線方向の単位ベクトル、 2θ : 散乱角)

この式は磁気散乱の差強度が電荷散乱と磁気散乱の干渉により生じていることを示している。差強度に寄与するのは共鳴散乱に関する磁化ベクトルの ($k+k'\cos 2\theta$) 方向への投影成分で、微小角においては磁化ベクトルを X 線進行方向に投影した成分が磁気散乱に寄与すると考えられる。

2-4 磁気円二色性の原理

XAS は内殻電子が空いた軌道、バンドに遷移することによって生じる X 線吸収を観測する手法であり、特に吸収端近傍の X 線吸収端構造 (XANES) は終状態の状態密度の情報を得ることができる。遷移過程は双極子近似が成り立ち $l \rightarrow l+1$ の遷移、すなわち s 軌道からは p 軌道、p 軌道からは s、d 軌道への遷移のみが可能である。この XANES 領域に円偏光 X 線を利用すると回転する電場が原子の角運動量に作用し、磁気量子数 $\Delta m = \pm 1$ の遷移選択則が新たに加わる。強磁性体では価電子帯で up と down spin に偏りがあることで $\Delta m = \pm 1$ の吸収に差が生まれる。このことから内殻吸収に磁気円二色性が生じる。磁気円二色性は元素選択的な磁性研究法として広く利用されている。

X 線のある物質に入射したときの吸収係数 μ は式 2-4 に示した散乱因子と次の関係がある。

$$\mu = \frac{4\pi n_0 r_e}{k} \text{Im}[f] \quad (2-9)$$

(n_0 : 単位体積あたりの原子数)

つまり、散乱因子の虚数項のみに依存する。右円偏光、左円偏光を入射したときの吸収係数はそれぞれ

$$\begin{aligned} \mu^+ &= \frac{4\pi n_0 r_e}{k} (f_c'' - f_m'' \cos \phi) \\ \mu^- &= \frac{4\pi n_0 r_e}{k} (f_c'' + f_m'' \cos \phi) \end{aligned} \quad (2-10)$$

(ϕ : X線と磁気モーメントのなす角)

吸収係数の和強度と差強度はそれぞれ

$$\begin{aligned} \frac{\mu^+ + \mu^-}{2} &= \frac{4\pi n_0 r_e}{k} f_c'' \\ \mu^+ - \mu^- &= \frac{4\pi n_0 r_e}{k} (-2f_m'' \cos \phi) \end{aligned} \quad (2-11)$$

となる。和強度は XAS に相当し、電荷散乱因子の虚数項を得ることができる。一方、差強度は XMCD に相当し、磁気散乱因子の虚数項を得ることができる。

2-5 円偏光 X線とヘリシティ

ある位置 z での X線電場の時間変化は時間 t に対して xy 平面内で振動する。電場ベクトルの x 成分、 y 成分は

$$\begin{cases} E_x = E_{x0} \cos \omega t \\ E_y = E_{y0} \cos(\omega t + \delta) \end{cases} \quad (2-12)$$

(ω : X線の角振動数、 δ : 位相差)

と表すことができる。直線偏光は E_x と E_y の比を常に一定に保つようにつまり式 2-11 において $\delta = 0, \pm\pi$ の場合を考えると、($\delta = 0, E_{x0} = E_0 \cos \phi, E_{y0} = E_0 \sin \phi$)

$$\begin{cases} E_x = E_0 \cos \phi \cos \omega t \\ E_y = E_0 \sin \phi \cos \omega t \end{cases} \quad (2-13)$$

となる。ここで ϕ は方位角 ($y=0$ からの角度) を表す。 $\phi = \pm 45^\circ$ の直線偏光に対して位相を $\pi/2$ ずらすと円偏光を得ることができる。すなわち

$$\begin{cases} E_x = E_0 / \sqrt{2} \cos \omega t \\ E_y = \pm E_0 / \sqrt{2} \sin \omega t \end{cases} \quad (2-14)$$

となる。この位相差を作り出すのが移相子である。放射光光源から得られるのは $\phi = 0^\circ$ の直線偏光なので、水平偏光が移相子にとって方位角 $\phi = 45^\circ$ または -45° となるように移相子の方位を $\phi = -45^\circ$ または 45° 回して設置し、位相を $\pi/2$ ずらすことで円偏光をつくることができる。実際のビームラインでは単結晶移相子の散乱面に対して直線偏光を $\phi = 45^\circ$ 傾けて入射し、単結晶で X 線がブラッグ回折するときの偏光方向による反射率の違いを利用することで π 偏光と σ 偏光の間に位相差をつける [2-16~18]。SPring-8 BL39XU では移相子にダイヤモンド単結晶を透過ラウエ配置で用いる。左右円偏光はブラッグ角 θ から移相子を $\pm \Delta\theta$ オフセットすることで得ることができる。オフセット角は 10^{-4} rad のオーダーである。結晶の微小な回転にはピエゾ素子の伸縮が利用されている。

式 2-14 において正の符号は右円偏光、負は左円偏光を表している。我々は X 線電場ベクトル軌跡が進行方向に対し右回りに回転する円偏光を右円偏光と定義している。一方ヘリシティは双極子近似における角運動量の保存則に基づいて [2-19]

$$\begin{aligned} J' &= J + \sigma \\ \sigma &= \sigma q \end{aligned} \quad (2-15)$$

(J, J' : 励起前後の電子の角運動量、 σ : 光子の角運動量の X 線方向成分)

ここで σ を光子ヘリシティーという。光子の角運動量が X 線方向と平行の場合、ヘリシティーは+1 となり、電子に角運動量+1 を与える。これが +ヘリシティーの円偏光 X 線である。原子の角運動量の磁化方向の単位ベクトル m への投影成分を考えた場合

$$M = J \cdot m \quad (2-16)$$

となり、式 2-14、15 から直ちに

$$M' = J' \cdot m = (J + \sigma) \cdot m = M + \sigma(q \cdot m)$$

$$\Delta M = M' - M = \sigma(q \cdot m) = \nu \quad (2-17)$$

が成り立つ。すなわち角運動量の変化は光子ヘリシティーとサンプルの磁化方向によって決定される。我々は $q \cdot m$ が正になる磁場配置を+磁場と定義している。

2-6 Gd-L 吸収端と Co、Fe-K 吸収端の光学遷移

円偏光 X 線を励起光とした光学遷移を簡単に示すと図 2-8 のように描くことができる。基底状態はひとつの内殻準位、終状態の伝導帯はスピンの分極していると仮定する。基底状態から励起された電子は伝導帯に遷移する。その遷移確率は光電子スピンと平行な終状態の電子の数(スピン分極密度)に依存する。光電子スピンは入射したフォトンのヘリシティーによって決まるので、左右円偏光で遷移確率が異なる。そのことによって XMCD が生じる。しかし、実際の光学遷移は基底状態および終状態にスピン軌道相互作用が働き、終状態には軌道の混成が生じるなど、もう少し複雑である。ここでは本研究で測定を行った遷移金属の Fe、Co の K 吸収端と Gd の L 吸収端の遷移について説明する。

Fe、Co の磁性は 3d 軌道が局所的に満たされていることが起源である。遷移先が 3d 軌道である Fe、Co-L 端吸収と異なり K 端吸収は 4p 軌道に

遷移する。よって K 端吸収は直接的に磁性を担う $3d$ 軌道状態を見ているのではないが、 $3d$ 軌道は $4p$ 、 $4s$ 軌道と混成しバンドを作っているために、 K 端吸収により $4p$ 軌道への遷移を見ることで間接的に磁気モーメントの情報を得ることができる。

Fe、Co の K 吸収端 ($1s \rightarrow 4p$) の遷移の様子を図 2-9 に示す。基底状態の s 軌道 ($l=0$) にはスピン軌道相互作用が働かないため始状態にスピン分極密度の差は生じない。よって円偏光ヘリシティーによる遷移確率の違いは終状態であるフェルミエネルギー直上の p バンドのスピン分極密度に依存する。Schütz らは終状態の $4p_{3/2,1/2}$ を考慮したバンド構造計算によって、Ebert らは相対論的な効果を取り入れた多重散乱理論によって K 端の XMCD スペクトルを説明している [2-20,21]。 $3d$ 遷移金属の XMCD スペクトルの形状は、ベル型と微分型の 2 種類に分けることができる。 $4p$ バンドのマジョリティーバンドが完全に占有され、マイノリティーバンドにのみ非占有状態がある Co、Ni ではベル型のスペクトルとなる。一方、マジョリティーバンド、マイノリティーバンド両方に非占有状態がある Fe では微分型のスペクトルとなる。しかし XMCD は磁気 XAFS とも言われていることから理解できるように、スペクトルは注目元素周りの物質にも影響を受ける。そのため合金や、界面の効果を反映した小ピークがスペクトルに混ざることがある。

希土類の磁性は局在した $4f$ 軌道に部分的に電子が満たされていることが起源である。隣接する原子との $4f$ 波動関数の重なりは小さく、そのために軌道モーメントは凍結されない。これと同じ理由で隣接するイオン間の交換相互作用は小さい。そのため、磁気分極を引き起こす交換相互作用はコンダクションバンドを通じて生じていると考えられている。つまり、コンダクションバンドの電子状態を知ることによって間接的に $4f$ 軌道の電子状態を推定することが可能である。コンダクションバンドの電子状態は L 殻を基底状態とした光学遷移によって調べることが可能である。

Gd の L 端 ($2p \rightarrow 5d$) の遷移について考える。終状態の p 軌道 ($l=1$) にはスピン軌道相互作用が生じる。そのため、図 2-10 に示すように相互作用によるエネルギー準位の分裂を生じる。 $j=3/2$ ($p_{3/2}$) は軌道モーメントとスピンモーメントが平行にカップルしている状態、 $j=1/2$ は反平行カップル状態である。そのエネルギー差は Gd の場合約 700 eV である。 s 軌道の始状態 ($l=0$) も考慮すると図 2-11 に示すように L 端は 3 つの遷移を含んでいる。 L_1 端は $l=0$ から $l=1$ (p -like) への遷移である。この遷移は定性的に $3d$ 遷移金属の K 端と同様で、 $4p$ 軌道の弱いスピン軌道相互作用によって弱い磁気円二色性が生じる。 $L_{2,3}$ 端は $2p_{1/2,3/2}$ から s 、 d

バンドへの励起を含んでいるが d バンドへの遷移の割合が圧倒的に大きい。そのため Gd の $L_{2,3}$ 端の遷移は ($2p_{3/2,1/2} \rightarrow 5d$) について考えればよい。Gd の $L_{2,3}$ 端 XMCD スペクトルはベル型で互いに反対の符号を持っている。スペクトルの対称性から 5d バンドのマジョリティ、マイノリティのスピンの占有状態を知ることができる。しかし、E2 遷移の効果などの要因によりスペクトルの歪みが生じることもある [2-22,23]。

2-7 円偏光共鳴 X 線磁気反射率の測定方法

共鳴 X 線磁気反射率測定は大型放射光施設 SPring-8 (高輝度光科学研究センター) のビームライン BL39XU で行った。光学系、サンプル周りの概略を図 2-12 に示す。ダイヤモンド二結晶分光器により単色化された水平偏光 X 線はダイヤモンド移相子によって円偏光に変換される。高次光は Rh 蒸着ミラーによってカットされる。X 線ビームサイズは四象限スリットによって $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ に調整した。試料の面内方向に磁場を印加するために小型電磁石 (玉川製作所) を 4 軸回折計のサークルに取り付け、試料は磁極の間の ϕ 軸に取り付けた。入射 X 線強度はイオンチェンバー (応用光研)、散乱 X 線は APD 検出器によって検出する。計数は SR400 高速フォトンカウンター (Stanford research systems) を用いた。本実験で利用する計数システムは $3.0 \times 10^6 \text{ count/sec}$ までの計数領域で線形性が保たれることが確認されている。適当な強度内で反射率強度が推移するように Mo 箔をアテネータとして用いた。共鳴 X 線磁気反射率測定は一般的な反射率測定と同様に、入射、反射 X 線ベクトルを k 、 k' としてそのベクトルの差で表される散乱ベクトル $q = k' - k$ が常に散乱面内の q_z 方向に変化する条件で角度スキャンを行う (q_z スキャン)。つまり入射角 ω 、散乱角 2θ と定義したとき $2\omega = 2\theta$ を保った角度スキャンである。

円偏光ヘリシティの反転による散乱強度と差強度を用いて磁気反射率偏極率 P は

$$\begin{aligned} \text{sum} &= (A^+ / I^+) + (A^- / I^-) \\ \text{diff} &= (A^+ / I^+) - (A^- / I^-) \\ P &= \frac{\text{diff}}{\text{sum}} = \frac{(A^+ / I^+) - (A^- / I^-)}{(A^+ / I^+) + (A^- / I^-)} \end{aligned} \quad (2-18)$$

(A : APD カウント、 I : イオンチェンバカウント、上付き添え字はヘリシティー)

で表される。磁場を X 線入射ベクトルに対して試料面内において平行方向に印加する磁場配置を平行配置、記号 $H_{//}$ で表す。同様に磁場を X 線入射ベクトルに対し試料面内で垂直方向に印加する磁場配置を垂直配置、記号 H_{\perp} で表す。平行配置においてプラス磁場を印加して測定された偏極率 P^{+} とマイナス磁場を印加して測定した偏極率 P^{-} の差をとり、その平均 $(P^{+} - P^{-})/2$ を磁気反射率プロファイルとした (磁場の定義は 2-5 節)。これはプロファイルから磁性に関係しないアーティフィシャルなバックグラウンドを取り除くためである。

磁気反射率偏極率は試料面内における注目元素の磁気モーメント M を X 線入射ベクトル k に投影した大きさに比例するので、ある鏡面反射配置に入射、散乱角を固定して偏極率の磁場依存性を測定することで面内の磁化ベクトルの k への投影成分の変化量を観察することができる。この測定方法を磁気反射率ヒステリシス測定と呼んでいる。図 2-13 に、ある任意の強さの磁場 H を (a) 平行配置、(b) 垂直配置において印加したときの注目元素の磁化ベクトルの状態を示す。実線、破線の矢印はそれぞれ面内の磁化ベクトル、磁化ベクトルを k へ投影した成分を表している。平行配置において磁化ベクトル M と X 線ベクトル k のなす角は α である。よって磁気偏極率を与える磁化ベクトルの成分は $M\cos\alpha$ となる。一方、垂直配置は試料面内 (xy 面) において平行配置から $\pi/2$ 磁場を回転した配置であるので、 $M\cos(\alpha+\pi/2) = M\sin\alpha$ が磁気偏極率を与える。よって任意の磁場 H において平行配置、垂直配置で測定した磁気偏極率をベクトルとして扱い合成することで、面内の磁化ベクトルの位置が

$$\mathbf{M} = |M|\cos\alpha \hat{y} + |M|\sin\alpha \hat{x} \quad (2-19)$$

の関係から推定することが可能である。実際の測定では各磁場配置独立に磁気反射率ヒステリシスを測定した後、同一磁場の磁気変極率をベクトル的に足し合わせ磁化ベクトルの大きさ、方向を決定した。

2-8 磁気円二色性の測定方法

磁気円二色性は磁気反射率と同じく BL39XU において透過法で測定した。サンプル周りの概略を図 2-14 に示す。試料は X 線ベクトルに対して 45°傾けて設置する。磁場は試料面内に平行方向に印加する。入射 X 線強度 I_0 、透過 X 線強度 I はイオンチェンバーによって検出する。各強度には以下の関係がある。

$$I = I_0 \exp(-\mu t) \quad (2-20)$$

$$\mu t = -\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)$$

(μ : 吸収係数、 t : 試料内の X 線パス長)

ヘリシティー反転による吸収係数の差が XMCD である。図 2-14 は入射 X 線ベクトル k 、と印加磁場の内積が正であるのでプラス磁場配置となっている。プラス磁場配置でプラスヘリシティーの X 線を入射したときの吸収係数を μ^+ と定義すると XMCD と X 線吸収は

$$\begin{aligned} \Delta\mu t &= \mu^+ t - \mu^- t = -\ln\left(\frac{I^+}{I_0^+}\right) - \left\{ -\ln\left(\frac{I^-}{I_0^-}\right) \right\} \\ \mu t &= \frac{\mu^+ t + \mu^- t}{2} = \frac{1}{2} \left[-\ln\left(\frac{I^+}{I_0^+}\right) + \left\{ -\ln\left(\frac{I^-}{I_0^-}\right) \right\} \right] \end{aligned} \quad (2-21)$$

となる。BL39XU では移相子により一定の周波数でヘリシティーを ± 1 の間で反転させ、吸収係数の変調に伴う XMCD シグナルをロックイン増幅器で抽出する方式で XMCD スペクトルを測定する。この方式を円偏光変調法といい、偏光変調の周波数に同期した信号成分のみを検出するため、その他の周波数のノイズ成分を落とすことができる [2-24,25]。イオンチェンバーからの電流信号は、カレントアンプ (KEITHLEY) によって電圧信号 $V(I_0)$ と $V(I)$ にそれぞれ変換されたのち、対数変換回路を通過して吸収量 μt に比例した電圧信号 $V(\mu t)$ を出力する。 $V(\mu t)$ の交流成分すなわち振幅は XMCD に比例する。ロックイン増幅器 (EG&G) で交流電圧成分を測定することで XMCD 信号を得る。 $V(\mu t)$ の直流成分

すなわち時間平均は通常の吸収に相当し、デジタルマルチメーター (KEITHLEY) で測定している。このように XMCD と通常の X 線吸収は同時に測定することが可能である。磁性に関係しないアーティフィシャルなバックグラウンドを取り除くため、プラス磁場配置で測定した XMCD スペクトルからマイナス磁場配置 XMCD スペクトルの差の平均を XMCD スペクトルとした。(XAS は和の平均)。

上記で測定した XMCD スペクトルは試料の厚みに比例した量になっているので試料間でスペクトルの大きさを議論することができない。XANES のエッジジャンプにより規格化した量 $\Delta\mu t/\mu t_{\text{jump}}$ を最終的な値とした。

2 章 参考文献

- [2-1] L. G. Parratt: Phys. Rev. **95** 359 (1954).
- [2-2] D. T. Cromer, D. Liberman: J. Chem. Phys. **53** 1891 (1970).
- [2-3] N. Hosoito, K. Ishibashi, T. Ohkochi, K. Kodama and Y. Hayasaki: J. Phys. Chem. Solids. **68**, 2153 (2007).
- [2-4] Y. Hayasaki, K. Ishiji, H. Hashizume, N. Hosoito, K. Omote, M. Kuribayashi, G. Srajer, J. C. Lang and D. Haskel: J. Phys.: Condens. Matter **16** 1915 (2004).
- [2-5] S. Roy, C. Sanchez-Hanke, S. Park, M. R. Fitzsimmons, Y. J. Tang, J. I. Hong, David J. Smith, B. J. Taylor, X. Liu, M. B. Maple, A. E. Berkowitz, C.-C. Kao, and S. K. Sinha: Phys. Rev. B **75** 01442 (2007).
- [2-6] D. R. Lee, S. K. Sinha, D. Haskel, Y. Choi, J. C. Lang, S. A. Stepanov, and G. Srajer: Phys. Rev. B **68** 22449 (2003).
- [2-7] J. Geissler, E. Goering, M. Justen, F. Weigand, and G. Schütz, J. Langer, D. Schmitz, H. Maletta and R. Mattheis: Phys. Rev. B **65** 02405 (2001).
- [2-8] G. Beutier, G. van der Laan, K. Chesnel, A. Marty, M. Belakhovsky, S. P. Collins, E. Dudzik, J.-C. Toussaint and B. Gilles: Phys. Rev. B **71** 184436 (2005).
- [2-9] J. Miguel, J. F. Peters, O. M. Toulemonde, S. S. Dhesi, N. B. Brookes, and J. B. Goedkoop: Phys. Rev. B **74** 094437 (2006).

- [2-10] M. Blume: J. Appl. Phys. **57** 3615 (1985).
- [2-11] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume and Doon Gibbs: Phys. Rev. Lett. **61** 1245 (1988).
- [2-12] P. Carra, B. N. Harmon, R. T. Thole, M. Alterelli, and G.A. Sawatzky: Phys. Rev. Lett **66** 2495 (1991).
- [2-13] J. C. Lang and George Srajer, C. Detlefs, A. I. Goldman, H. König, Xindong Wang, and B. N. Harmon: Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 4935.
- [2-14] N. Ishimatsu, H. Hashizume, S. Hamada and N. Hosoito: Phys. Rev. B, **60** 9596 (1999).
- [2-15] 菊田惺志 : X線回折散乱技術上 (東京大学出版会 1992) .
- [2-16] K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka, S. Kikuta; Jpn.: J. Appl. Phys. **30** L407 (1991).
- [2-17] 鈴木基寛 : 放射光 **19**, 444 (2006) .
- [2-18] S. W. Lovesey and S. P. Collins: X-Ray scattering and absorption by magnetic materials (Oxford Science Publications 1996).
- [2-19] H. Ebert, P. Strange, and B. L. Gyorffy: J. Appl. Phys. **63** (1988) 3055.
- [2-20] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materlik: Phys. Rev. Lett. **58** 737 (1987).
- [2-21] P. Carra, B. N. Harmon, R. T. Thole, M. Alterelli, and G.A. Sawatzky: Phys. Rev. Lett **66** 2495 (1991).
- [2-22] K. Fukui, H. Ogasawara, A. Kotani, I. Harada, H. Maruyama, N. Kawamura, K. Kobayashi, J. Chaboy, and A. Marcelli: Phys. Rev. B. **64** 104405 (2001).
- [2-23] M. Suzuki: SPring-8 information **3** 40 (1998).
- [2-24] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa: J. Appl. Phys. **37** L1488 (1998).

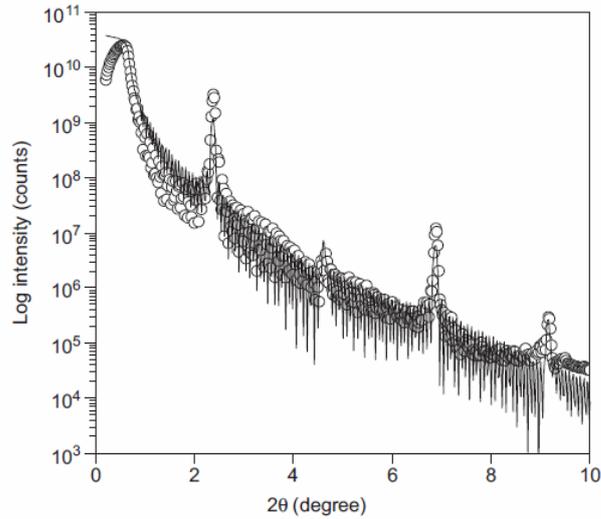


Fig. 1. Charge reflectivity profile of the Fe/Cu multilayer measured at X-ray energy of 8983.5 eV (circles) with the fitted curve (line).

図 2-1. Fe/Cu 多層膜の Cu- K_{α} 近傍 (8983.5 eV) での反射率プロファイル [2-2]

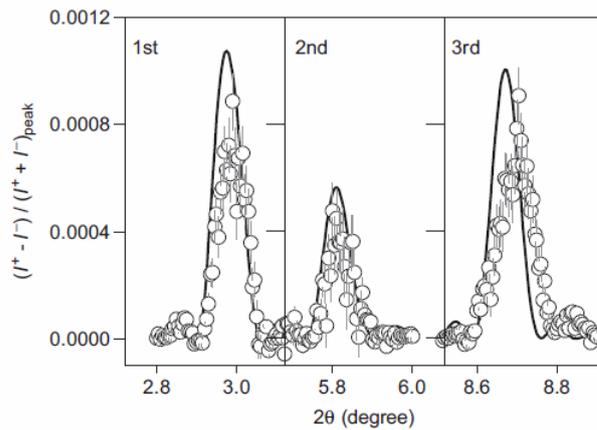


Fig. 5. The best-fit result of the magnetic diffraction profiles based on an empirical model. The observed data are the same as those given in Fig. 2.

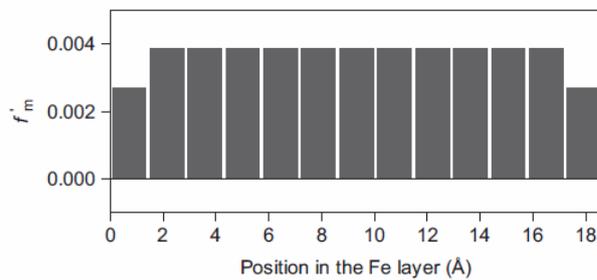


Fig. 4. Real part of depth-dependent magnetic scattering amplitudes in the Fe layer at 7112.5 eV determined from an empirical model.

図 2-2. Fe/Cu 多層膜の Fe-K 端近傍 (7112.5 eV) での共鳴 X 線磁気ブラッグ回折 (上図)、Fe 層の磁気散乱振幅の分布モデル (下図) [2-2]

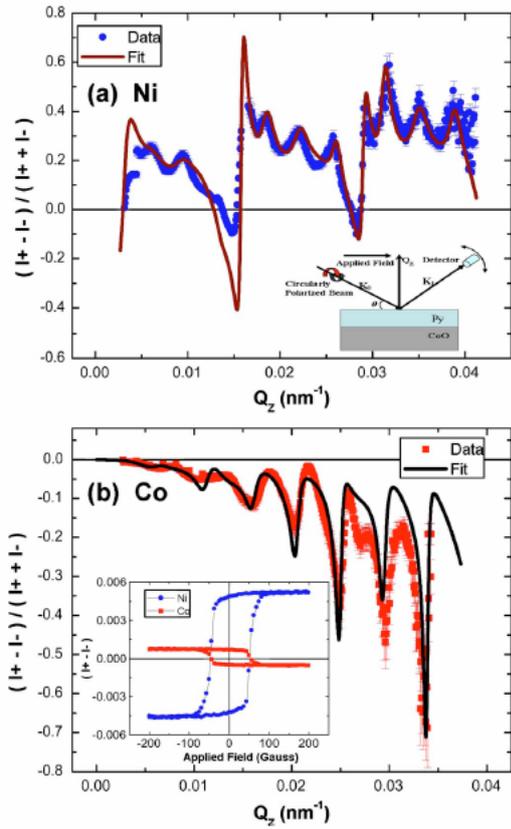


FIG. 2. (Color online) Asymmetry ratio curves as a function of wave-vector transfer Q_z at the Ni (a) and Co (b) edge. The blue circles and red squares are the data, while the continuous lines are the fitted curves. The inset in Fig. 2(a) shows the experimental scattering geometry used for the measurements. The inset in Fig. 2(b) shows an element specific hysteresis loop at the Ni ($Q_z=0.028 \text{ nm}^{-1}$) and Co ($Q_z=0.025 \text{ nm}^{-1}$) edge, respectively.

図 2-3. Py/CoO 二層膜の (a) Ni- L_3 端近傍 (851.4 eV) (b) Co- L_3 端近傍 (777 eV) 共鳴 X 線磁気反射率プロファイル [2-5]

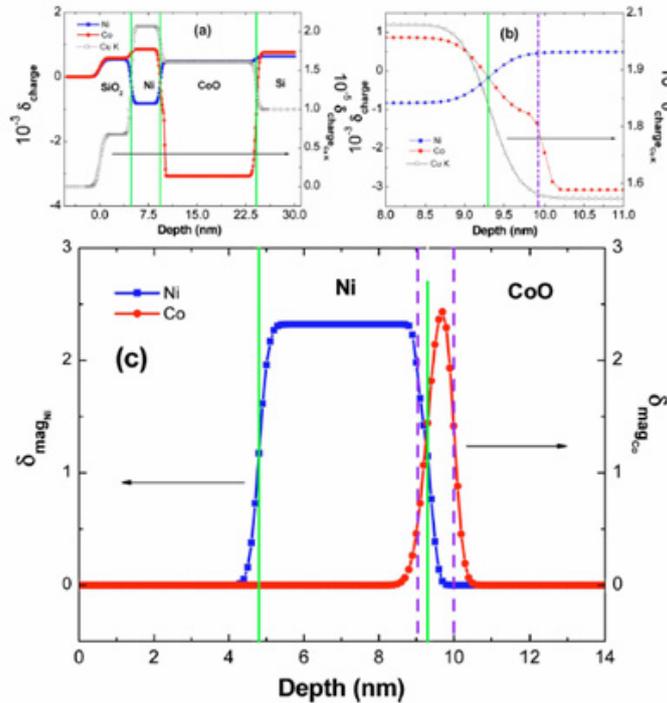


FIG. 3. (Color online) (a) Charge density profile at Cu $K\alpha$ (black open square), Ni (blue square), and Co (red circle) energies. (b) Detail of the charge density profile at the Py/CoO interface. Right-hand scale is the Cu $K\alpha$ ordinate. (c) Magnetic density profile. Green lines represent structural/chemical interfaces, whereas violet dashed lines mark the region near the Py/CoO interface that exhibits modified magnetism.

図 2-4. Py/CoO 二層膜の磁気界面モデル [2-5]

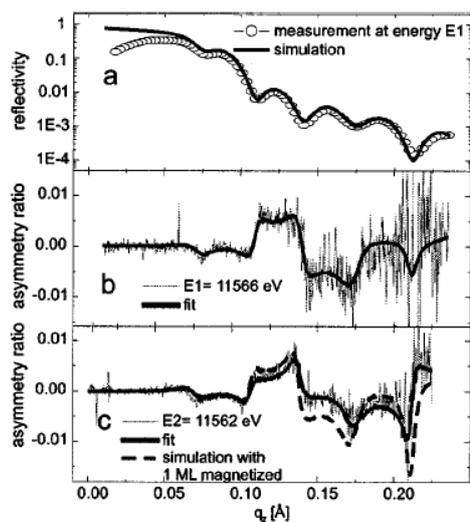


FIG. 3. Reflected intensity (a) and asymmetry ratios (light lines) normalized to the degree of circular polarization at energies $E1 = 11566.2$ eV (b) and $E2 = 11562.2$ eV (c) compared to simulations (dark lines). The calculated asymmetry curve (c) for a Pt polarization concentrated in the first monolayer carrying the same total magnetization (dashed line).

図 2-5. Pt/Co 二層膜の硬 X 線 Pt- L_3 端電荷および磁気反射率測定 [2-7]

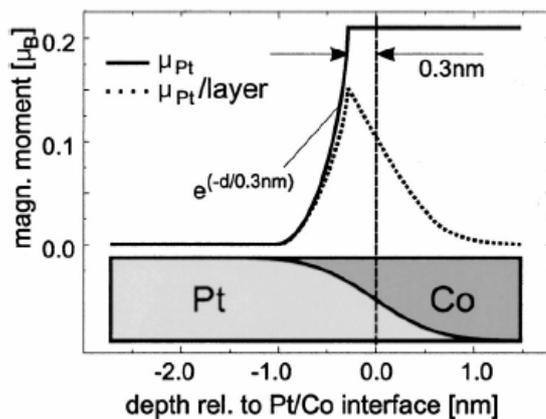


FIG. 4. Profile of the induced Pt $5d$ magnetic polarization per Pt atom (straight line) and per layer (dotted). In addition the chemical profile of the Pt/Co interface is shown at the bottom.

図 2-6. Pt/Co 二層膜の磁気界面モデル [2-7]

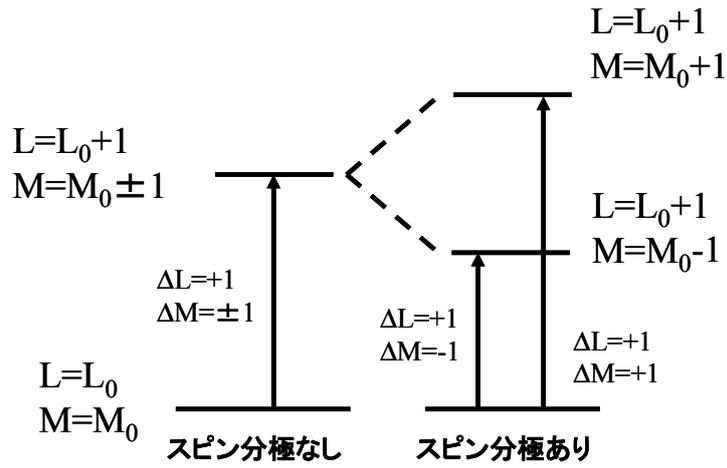


図 2-7. 双極子遷移エネルギー図 [2-18]

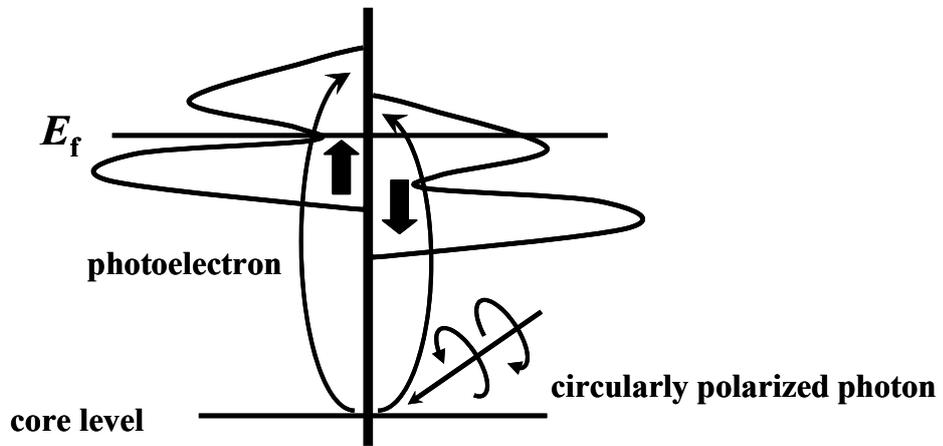


図 2-8. 円偏光励起による光学遷移 [2-18]

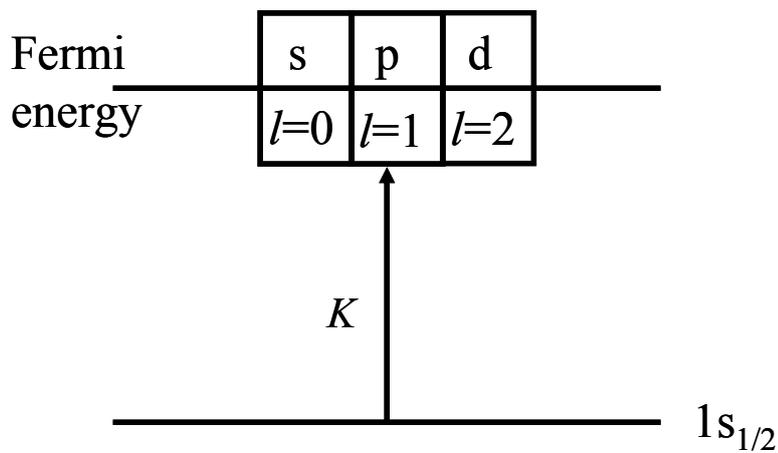


図 2-9. K 吸収端 ($1s \rightarrow 4p$) の光学遷移 [2-18]

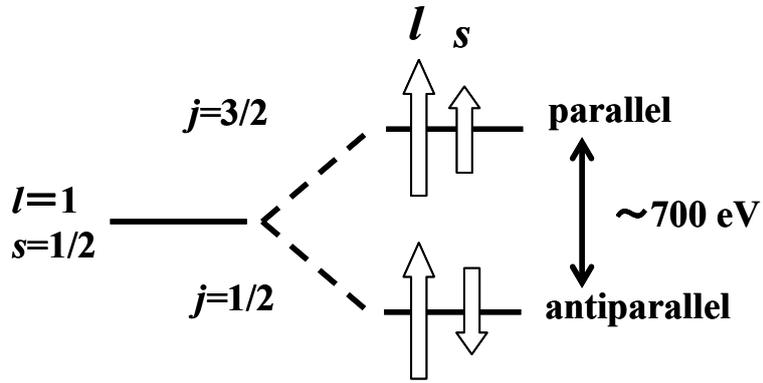


図 2-10. スピン軌道相互作用によるエネルギー準位の分裂 [2-18]

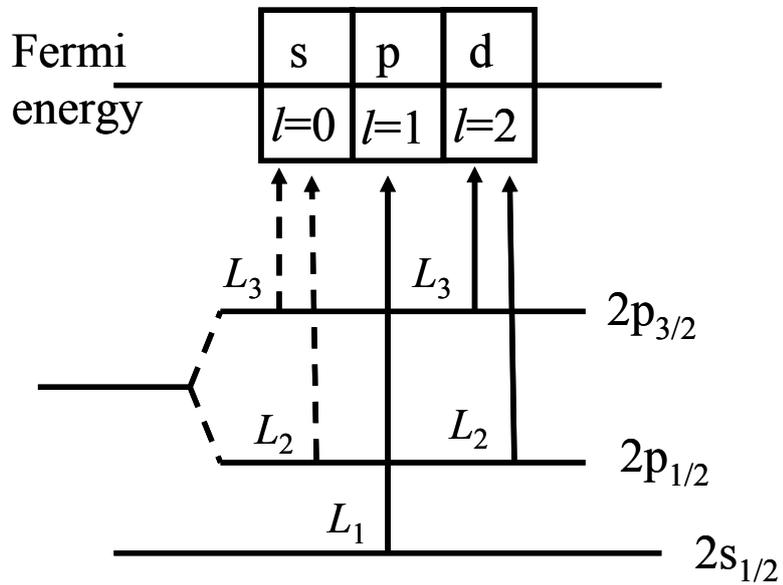


図 2-11. L 端吸収端 ($2p \rightarrow 5d$) の光学遷移 [2-18]

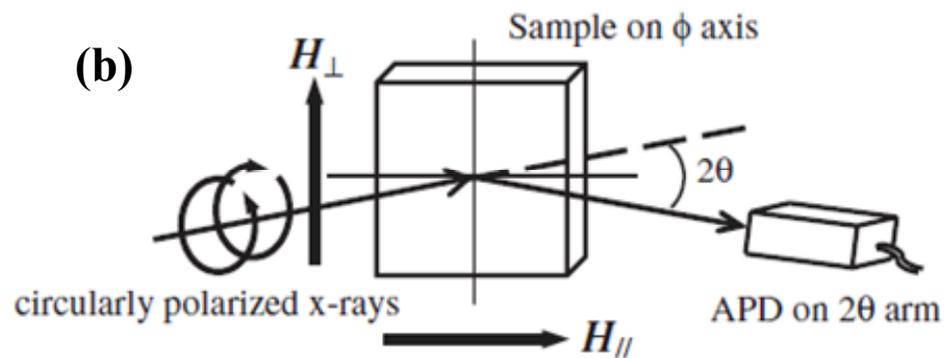
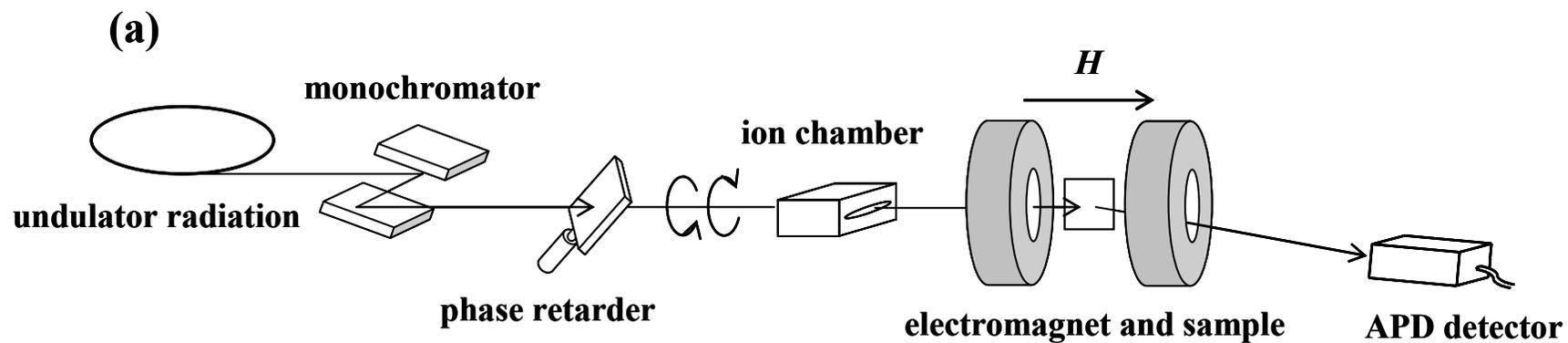


図 2-12. SPring-8 ビームライン BL39XU 磁気反射率測定実験配置図 (a) 光学系、(b) サンプル周りの概略

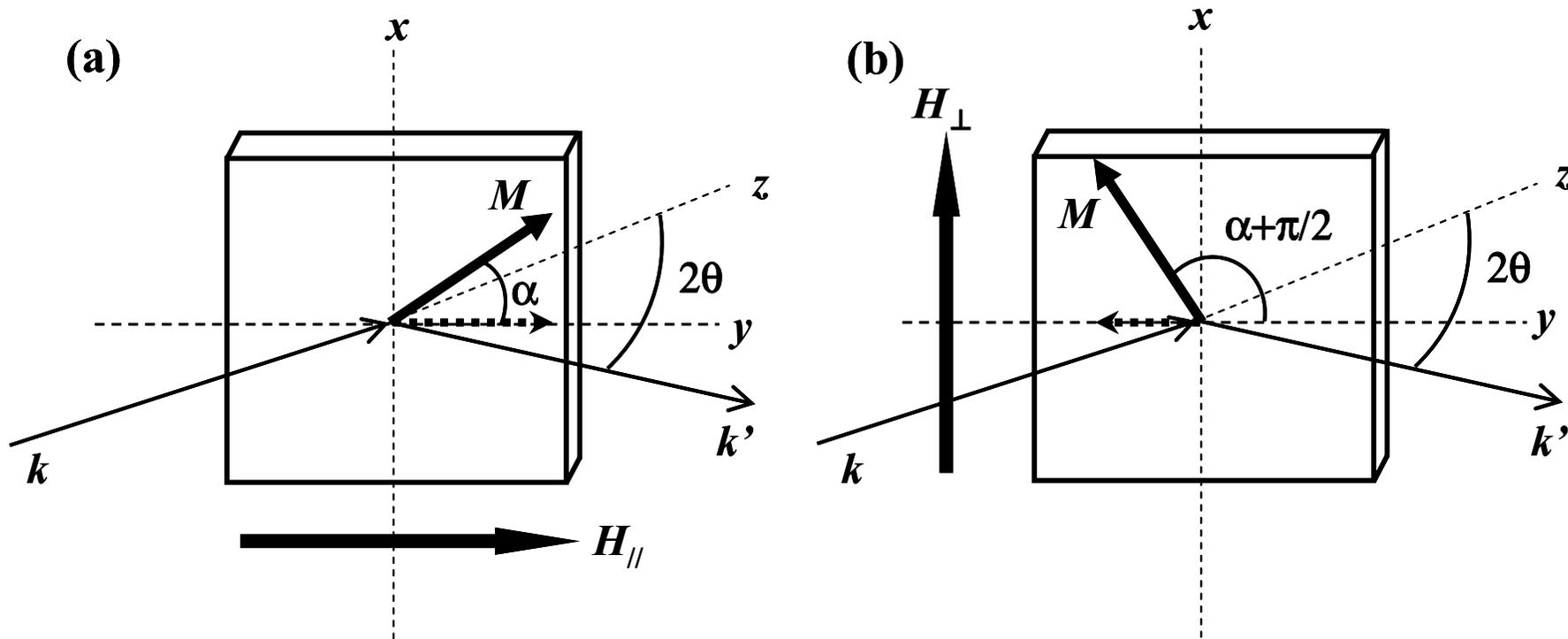


図 2-13. 磁場配置と磁化ベクトルの関係 (a) 平行配置、(b) 垂直配置

実線の矢印は注目元素の磁化ベクトルを表す。破線の矢印は磁気散乱に寄与する成分を表す。

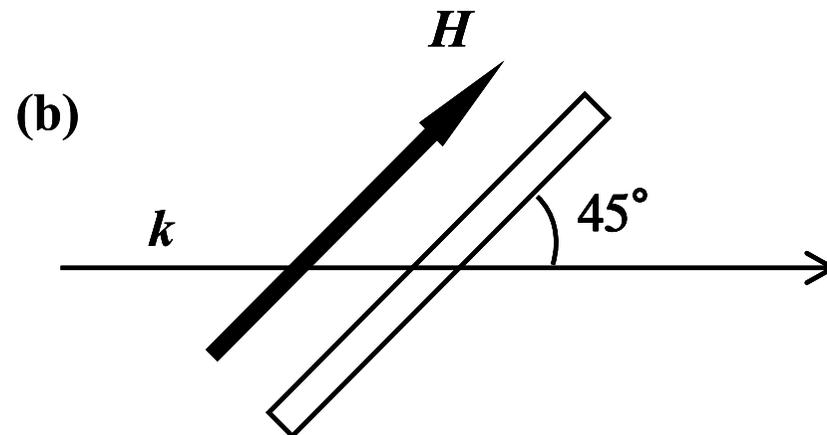
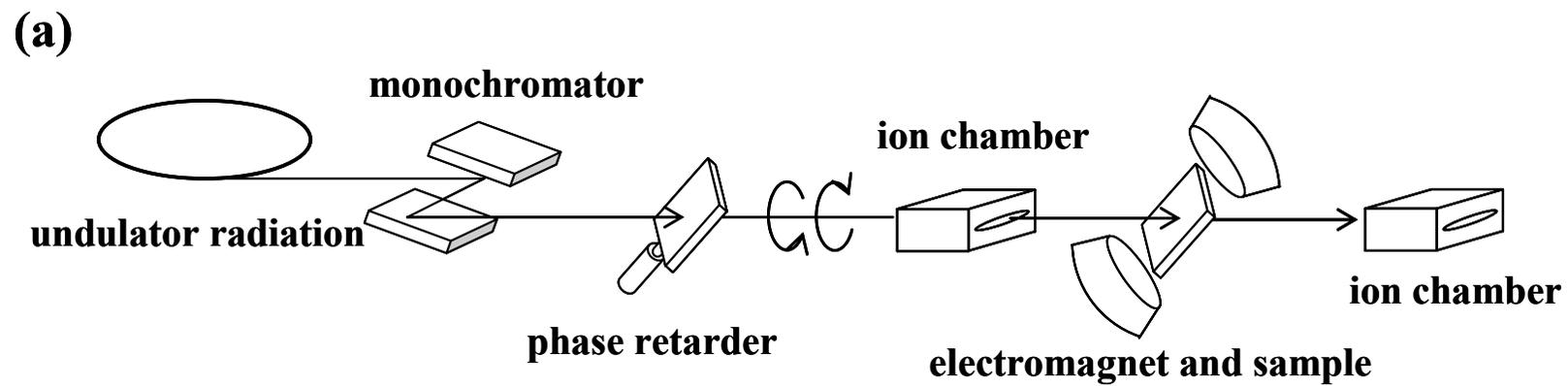


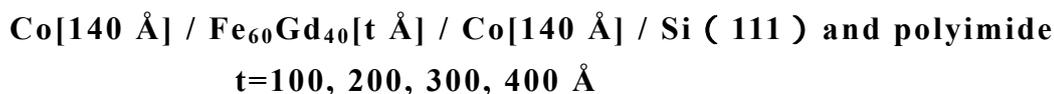
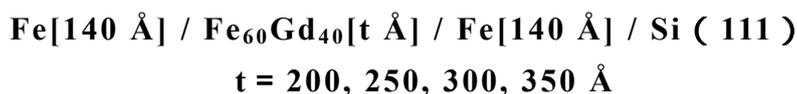
図 2-14. SPring-8 ビームライン BL39XU 磁気円二色性実験配置図 (a) 光学系、(b) サンプル周りの概略

3 章 試料作製と評価

3-1 真空蒸着法による TM/FeGd/TM 三層膜(TM=Fe, Co)の作製

真空蒸着装置（エイコーエンジニアリング EK-500）によって試料作製を行った。図 3-1(a)に装置の排気系、(b)に成長室内の概略を示す。試料成長室はロータリーポンプおよびターボ分子ポンプで 10^{-8} torr 程度まで 1 次排気を行った後、イオンポンプによって 10^{-11} torr 台の超高真空まで排気される。導入室からトランスファーロードによる基板搬送が可能であるため、成長室の真空を破ることなく試料基板の交換ができる。蒸着装置には 3 kW 電子銃が 3 つ備えられており、フィラメントから発生する電子線をるつぼ内の蒸着源に照射し加熱蒸発させることで製膜を行う。蒸着速度、堆積膜厚は各るつぼの上にある水晶振動子によって観察できる。水晶振動子コントローラによってフィラメント電流はフィードバック制御が可能のため、蒸着速度を設定した値に保つことができる。またシャッター開閉も自動制御される。基板加熱のために 800 度まで昇温できるヒーターが基板背面に備えられている。表面構造は RHEED によって観察することができる。

本研究で作製した Fe/FeGd/Fe および Co/FeGd/Co 三層膜を以下に示す。



下付き添え字は原子%をあらわす

なお結晶の配向、組成を調べるために



も準備した。膜成長の前処理として、基板をエタノール、アセトン、純水中で各 10 分間超音波洗浄を行った。Si 基板の自然酸化膜の除去は行っていない。全ての試料は室温基板上に作製した。Fe、Co、FeGd 合金の設定蒸着速度を表 3-1 に示す。FeGd 合金層の組成比は Fe と Gd の蒸着速度比を一定に保つことによって調整することが可能である。蒸着によって単位時間あたりに堆積する原子の数は一般的に次の式で表される。

$$n = 10^{-8} v \rho N_A / M \quad (3-1)$$

(v : 蒸着速度 (Å/sec)、 ρ : 密度 (g/cm³)、 N_A : アボガドロ数、 M : 原子量)

Gd の蒸着速度は 0.34 Å/sec で固定したため、表 3-2 に示された数値を使って堆積する原子数が求まる。Fe : Gd = 60 : 40 になるような蒸着速度を求めると Fe の成長速度は 0.18 Å/sec となる。膜成長時には Fe の成長速度が常に Gd の成長速度の 0.53 倍となるようにフィードバック制御を行った。なおいずれの試料作製においてもベース真空度は 10⁻¹¹ 後半から 10⁻¹⁰ torr 前半、成長中の真空度は 10⁻¹⁰ torr 台であった。

3-2 構造評価

X 線回折実験によって薄膜の配向、結晶性の評価を行った。実験には X 線回折計(マックサイエンス M18XHFVA)を用いた。加速電圧 50 kV、フィラメント電流 120 mA、波長 Cu-K_α (8048 eV) の条件で測定を行った。

図 3-2 (a) に各単層膜と FeGd 合金膜の測定結果を示す。2θ=30°付近の強いピークは Si (111) 反射である。ほぼ同じ角度に hcp-Gd (002) の反射がありのピークの重なりによって Gd 単層膜については幅が広がっている。しかし FeGd 合金では Gd の配向を示す反射は確認されない。よって Gd 単層の場合では c 軸成長が優先的に起こるが、Fe と合金化することでアモルファス化もしくは微結晶化することが示唆される [3-1]。Fe および Co 単層膜において配向性は確認されなかった。基板表面が酸化膜に覆われていること、室温で比較的早い蒸着速度で作製したことにより無配向成長したと考えられる。図 3-2 (b)、(c) に Fe/FeGd/Fe およ

び Co/FeGd/Co 三層膜の測定結果を示す。単層膜、合金膜が無配向なので、三層膜も同様に無配向である。図 3-3 に異なる X 線回折装置（理学電機 RU-200B）を用いて再測定した FeGd 層厚さ 300 Å の Fe/FeGd/Fe 三層膜と Co/FeGd/Co 三層膜（図 3-2 の FFGF300 試料と CFGC300 試料）の結果を示す。測定条件は加速電圧 40 kV、フィラメント電流 100 mA、波長 Cu- $K\alpha$ （8048 eV）である。図 3-2 では両試料の $2\theta=30^\circ$ 付近のブロードなピークは見えにくいが図 3-3 では明確に確認できる。この違いは測定ごとの鏡面反射条件からのオフセットの差で生じる Si(111) 反射の見え方の違いなどに起因するものである。図 3-2 に示す他の試料で $2\theta=30^\circ$ が平坦に見える試料も実際はブロードなピークは存在していると思われる。図 3-2 の FFGF300 で確認できる $2\theta=42.6^\circ$ 付近の非常に小さなピークは図 3-3 においても確認することができる。このピークは Gd(102) 反射と考えられ、FFGF200 においても確認される。FeGd 合金の結晶化が部分的に生じていることに由来するピークの可能性がある。Co/FeGd/Co 三層膜ではそのピークが確認されないため、Fe/FeGd/Fe 試料は FeGd 合金結晶化が促進されやすいのかもしれない。

三層膜における Fe と Gd の組成比を確認するために Fe-K、Gd- L_3 端近傍の X 線吸収スペクトル測定を行った。実験は SPring-8 ビームライン BL39XU で行った。実験で求めた元素の吸収端付近の XANES ジャンプ量は Cromer-Lieberman の共鳴電荷散乱振幅を用いて [3-2]

$$\mu t_{jump} = \frac{4\pi r_e}{k(E_a)} \rho [f''_{CL}(E_a + \delta) - f''_{CL}(E_a - \delta)] t \quad (3-2)$$

（ E_a ：吸収端エネルギー、 ρ ：数密度、 t ：X 線パス長）

の関係で表される。Fe-K、Gd- L_3 端でのスペクトルのジャンプ高さが実験と一致するような ρt_{Fe} 、 ρt_{Gd} を計算によって求める。それぞれの元素の数密度 Fe: 8.49×10^{22} 、Gd: $3.02 \times 10^{22} / \text{cm}^3$ を用いて $8.49 \times 10^{22} t_{Fe} : 3.02 \times 10^{22} t_{Gd}$ の比は FeGd 合金の組成比を表す。ジャンプ高さから見積もった FeGd 合金の組成比 $\rho t_{Fe} : \rho t_{Gd}$ は 61.4 : 38.6 であった。設計した組成比とおおむね一致する。

3-3 磁気特性評価

振動試料型磁力計（理研電子 BHV-525RSCM）によって試料の磁化測定を行った。この磁力計は均一磁場中においた試料を一定の周波数・振幅で振動させ、試料近辺に配置した検出コイルに誘起される交流起電力の振幅をロックインアンプによって検出する。振動磁束によって生じる誘導起電力は

$$V(t) \propto Ca\omega M \cos \omega t \quad (3-3)$$

（ a ：試料の振幅、 ω ：周波数、 M ：試料の磁化、 C ：検出コイルにまつわる定数）

の関係で与えられる。交流起電力の振幅は磁気モーメント M と $a\omega$ の積に比例し、その周波数は ω である。よって検出コイル信号の中から周波数 ω の信号のみ分別すればその振幅から磁化に比例した量を求めることができる [3-3]。

図 3-4 (a) から (d) に Fe/FeGd/Fe 三層膜の磁化曲線、図 3-5 (a) から (d) に Co/FeGd/Co 三層膜の磁化測定結果を示す。磁場は試料面内に平行に印加して ± 10 kOe の磁場の領域でヒステリシス測定を行った。Co/FeGd/Co 三層膜では (c)、(d) において、Fe/FeGd/Fe 三層膜については全てのグラフにおいて磁化曲線に折れ曲がり確認できる。その磁場をスピントロップ磁場、 H_{sf} と定義する。各グラフは H_{sf} を含めた磁化曲線の全体像が分かるように意図的に異なる磁場範囲で表示している。すべての試料は ± 10 kOe の磁場では飽和に至らなかった。表 3-3、3-4 に各試料の H_{sf} についてまとめる。また図 3-6 に試料面内に対して垂直に磁場を印加した場合の磁化曲線を示す。残留磁化は、ほぼ零もしくは 10^{-5} emu のオーダーである。面内に磁場を印加した場合の残留磁化の値と比較して一桁、もしくはそれよりも小さい。また磁化曲線の傾きがかなり小さいことから試料面直方向は磁化困難方向であるといえる。hcp-Gd、hcp-Co の c 軸が試料面直に成長していれば面直方向に磁化が安定する可能性が考えられるが、X 線回折の結果はその可能性を否定している。また Mimura らは μm オーダーの厚い FeGd 膜において面直方向が容易軸になることを報告している [3-4]。しかし本実験で作製した薄膜は彼らの厚みの約 1/1000 であり、一般的にも無配向の nm オーダーの薄膜は試料面内が磁化容易軸である。この事実は面直方向を z 、面内平面を xy で表現

した場合、磁気モーメントの自由度を xy 平面に限定して扱うことを可能にする。磁壁の存在を考慮すると z 方向の磁化成分も存在するかもしれないが、観測している磁化への寄与は無視できる。

参考として FeGd 単層膜の面内方向に磁場を印加した磁化曲線を図 3-7 に示す。単層ではほとんど保磁力をもたないことが分かる。磁場の極性反転に伴って面内の磁化はただちに反転する。Fe、Co 単層膜も同様の性質を示すことが知られている。

3 章 参考文献

[3-1] J. Orehotsky and K. Schröder: J. Appl. Phys. **43** 2413 (1972).

[3-2] D. T. Cromer and D. Liberman, J. Chem. Phys. **53**, 1891 (1970).

[3-3] 近桂一郎、安岡弘志編：実験物理学講座 6 磁気測定（丸善 1999）。

[3-4] Y. Mimura, N. Imamura, and T. Kobayashi: J. Appl. Phys. **47** 368 (1976).

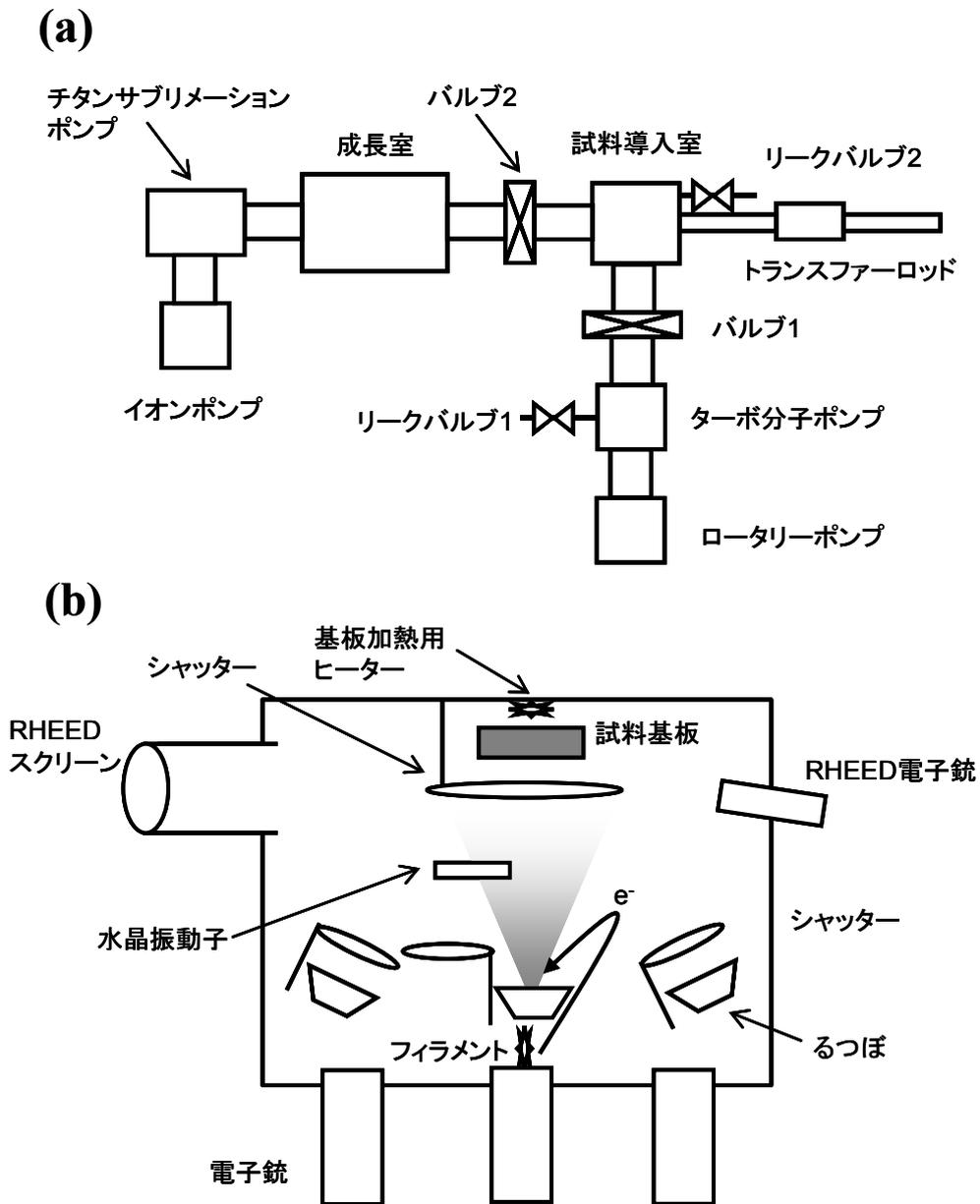


図 3-1. (a) 真空蒸着装置の排気系 (b) 成長室内の概略図

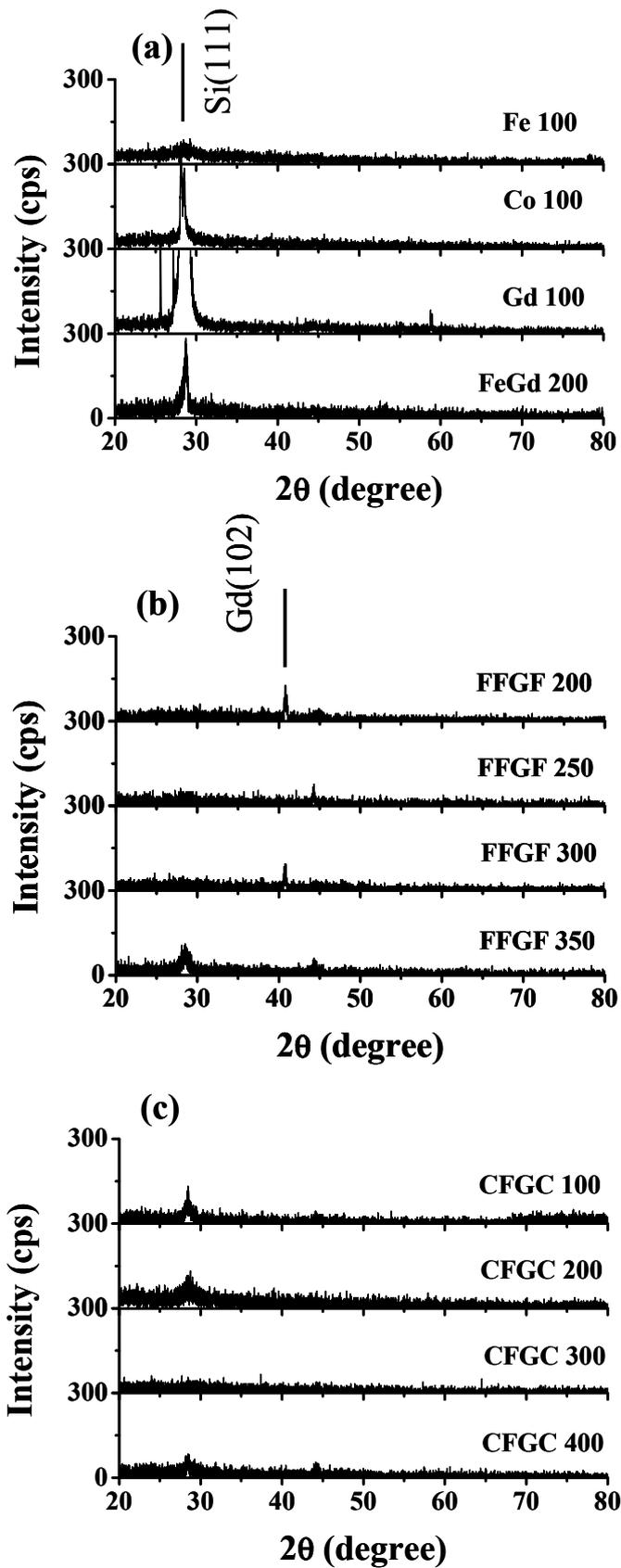


図 3-2. Cu- K_{α} X 線回折 (a) 各元素の単層膜と FeGd 合金単層膜 (数字は厚さ Å)、(b) FFGF : Fe/FeGd/Fe 三層膜、(c) CFGC : Co/FeGd/Co 三層膜 (数字は FeGd 合金層の厚さ Å)

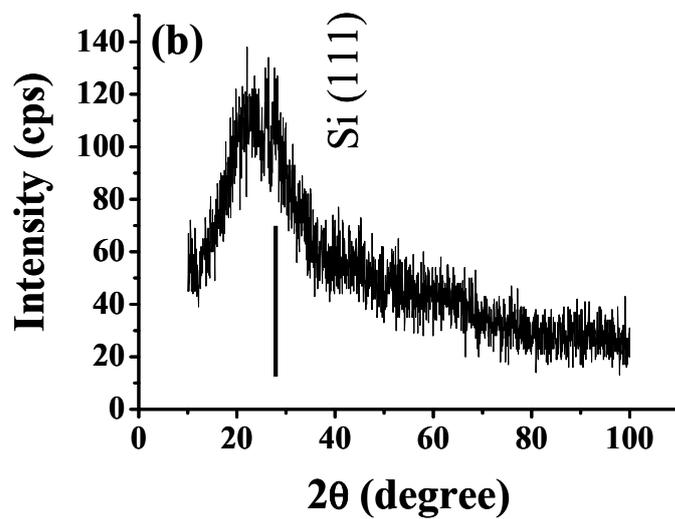
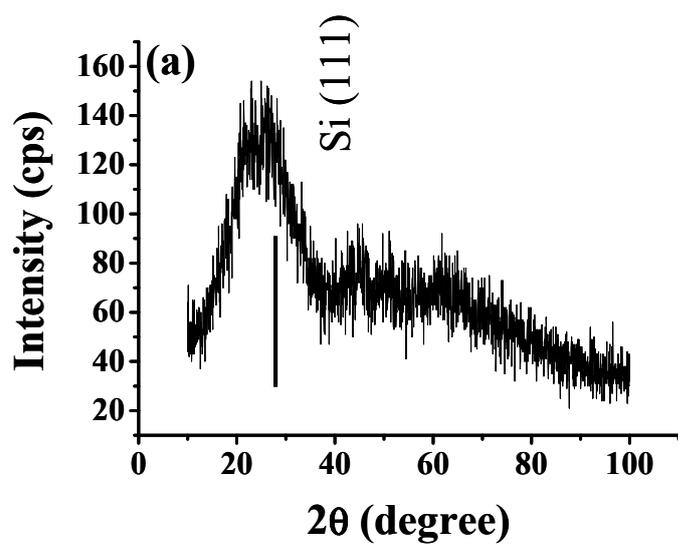


図 3-3. Cu- K_{α} X 線回折 (a) FFGF300 試料 (b) CFGC300 試料

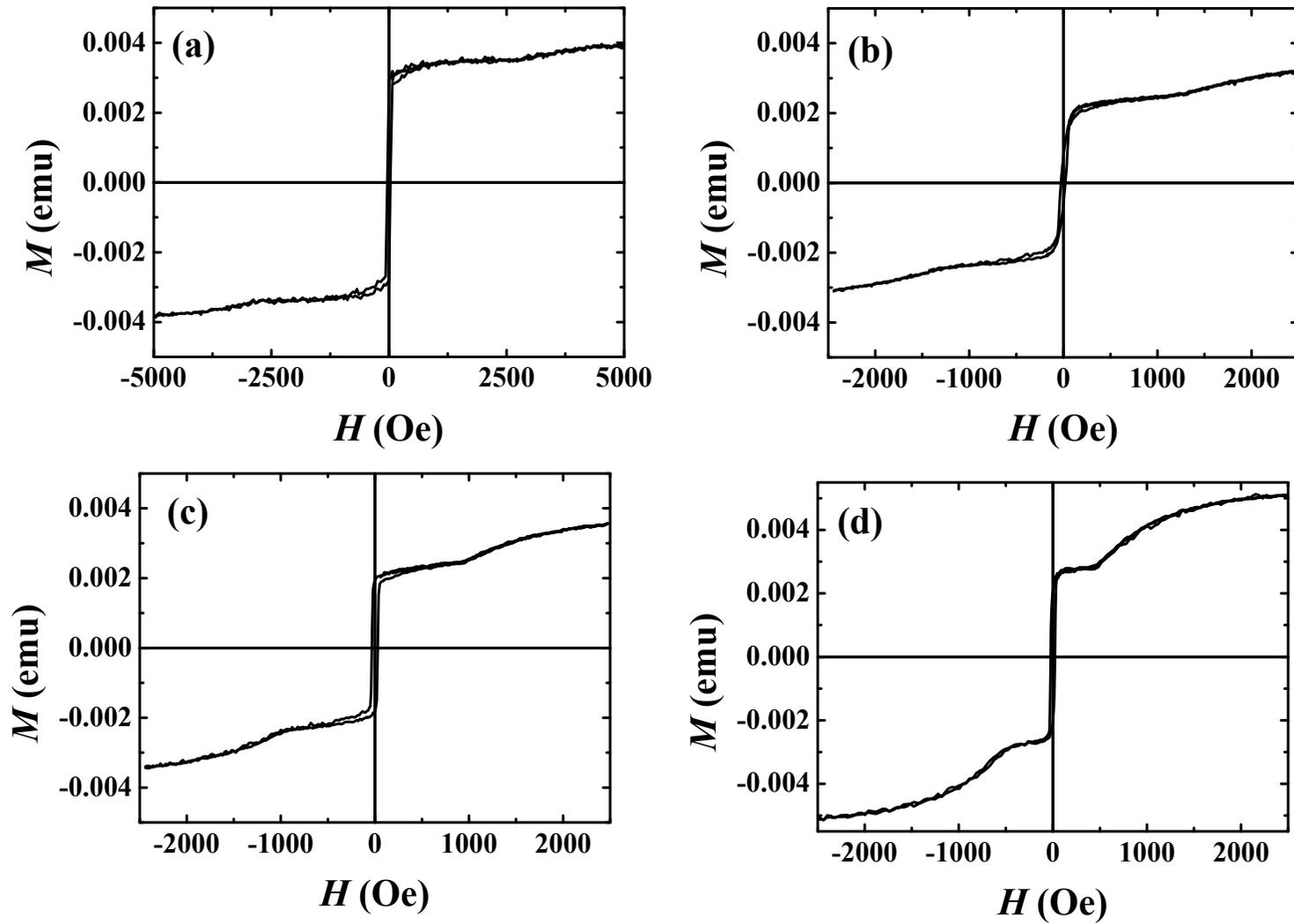


図 3-4. $\text{Fe}[140 \text{ \AA}]/\text{FeGd}[t \text{ \AA}]/\text{Fe}[140 \text{ \AA}]$ 三層膜の磁化曲線 (a) ~ (d) はそれぞれ $t = 200, 250, 300, 350 \text{ \AA}$

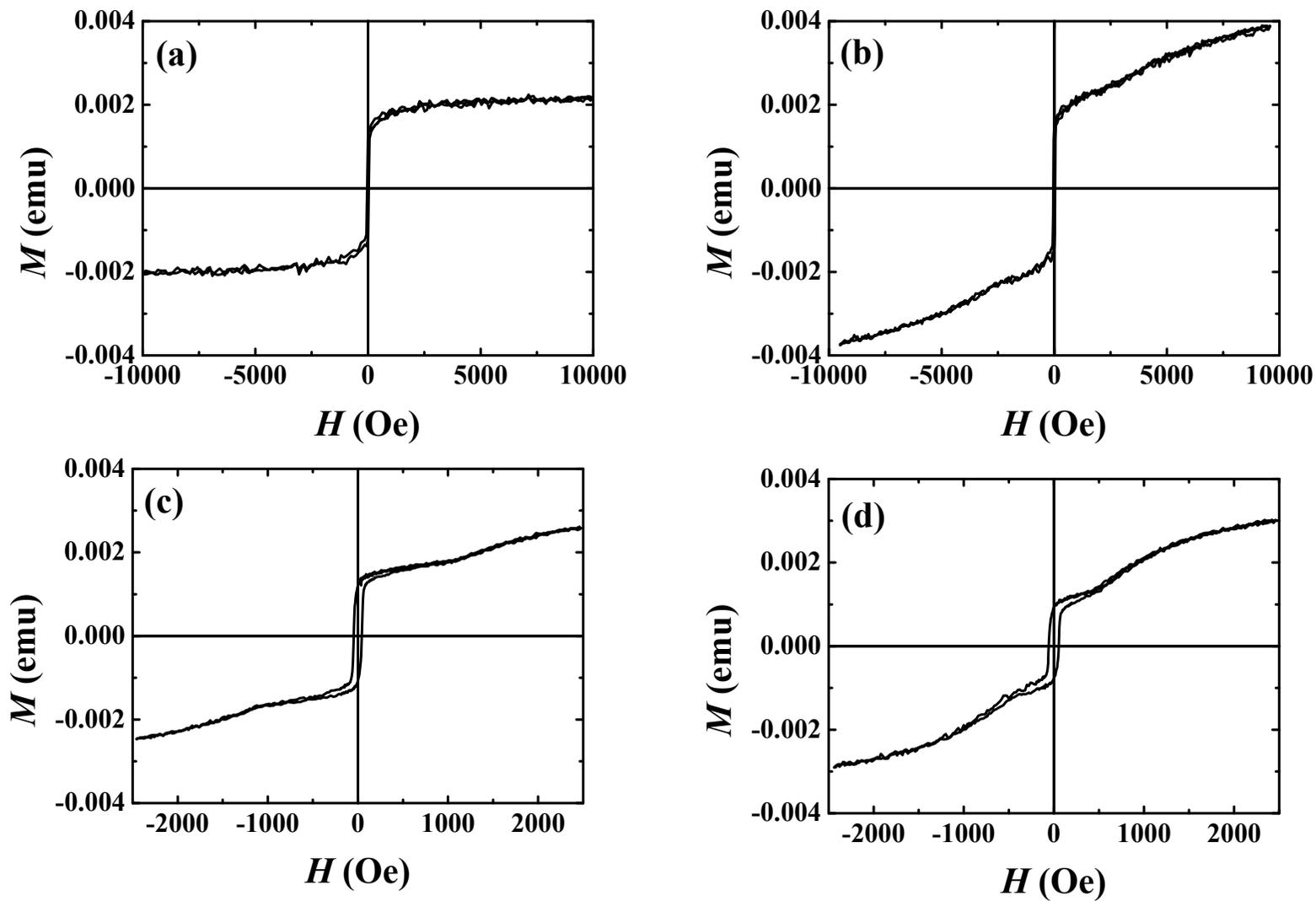


図 3-5. $\text{Co}[140 \text{ \AA}] / \text{FeGd}[t \text{ \AA}] / \text{Co}[140 \text{ \AA}]$ 三層膜の磁化曲線 (a) ~ (d) はそれぞれ $t = 100, 200, 300, 400 \text{ \AA}$

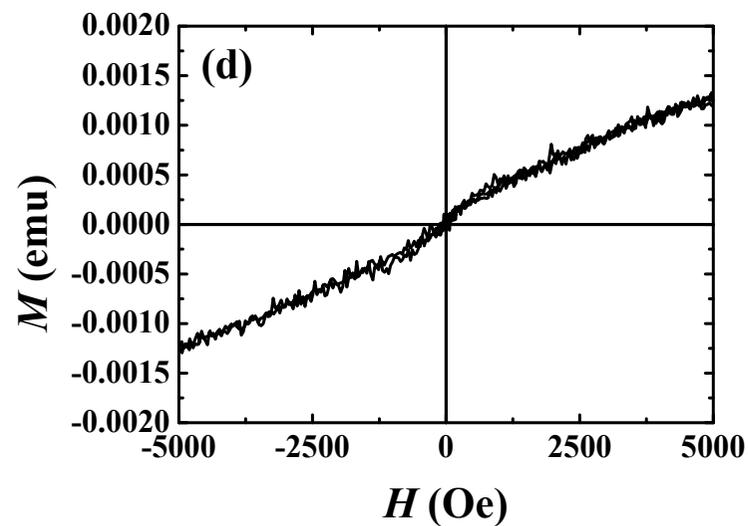
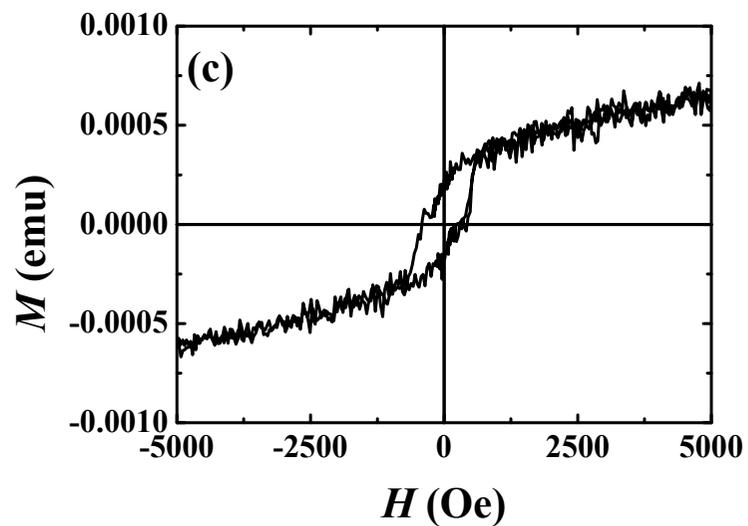
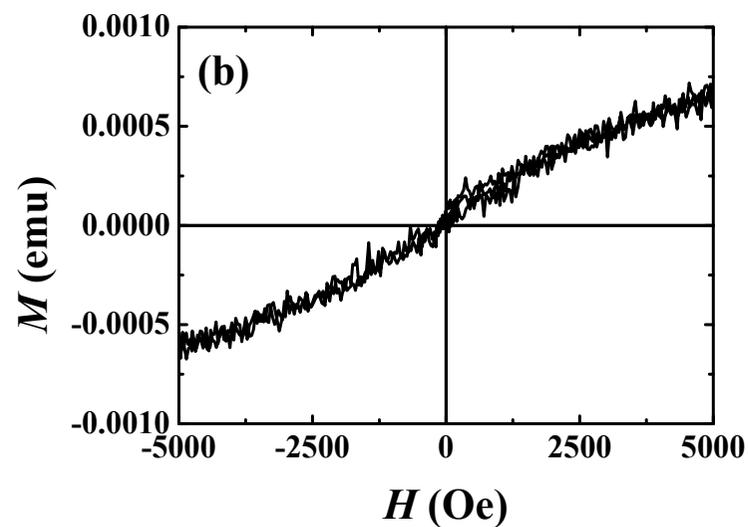
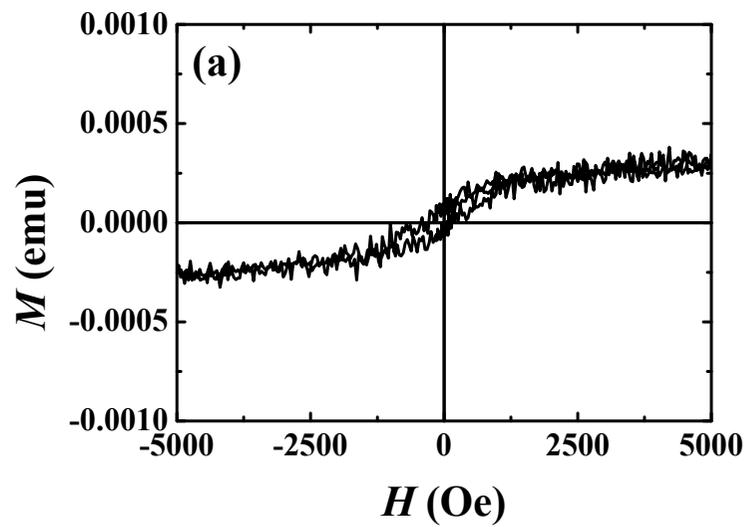


図 3-6. 面直方向に磁場を印加した場合の磁化曲線 (a) Co/FeGd[200 Å]/Co、(b) Co/FeGd[400 Å]/Co、(c) Fe/FeGd[200 Å]/Fe、
(d) Fe/FeGd[350 Å]/Fe

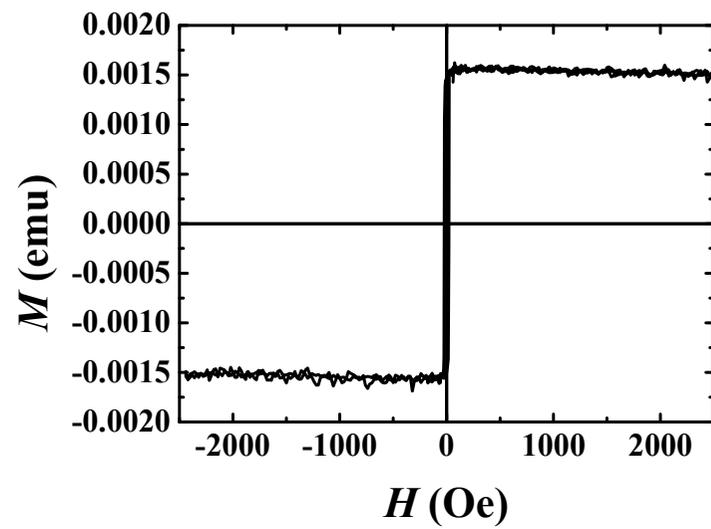


図 3-7. FeGd[200 Å]単層膜の磁化曲線

表 3-1 蒸着速度

層	蒸着速度 (Å/sec)
Fe 層	0.18
Co 層	0.18
FeGd 合金層	Gd: 0.34, Fe: Gd×0.53

表 3-2 Fe と Gd の物性値

	ρ (g/cm ³)	M
Fe	7.877	55.847
Gd	7.87	157.25

表 3-3 Co/FeGd/Co 三層膜の H_{sf} の値

t_{FeGd} (Å)	H_{sf} (Oe)
100	-
200	2100
300	1000
400	440

表 3-4 Fe/FeGd/Fe 三層膜の H_{sf} の値

t_{FeGd} (Å)	H_{sf} (Oe)
200	2910
250	1200
300	900
350	400

4章 Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd 選択的磁化過程

4-1 Fe/FeGd/Fe 三層膜、FeGd 合金を含む数層膜の既往研究

Fe/FeGd/Fe 三層膜の FeGd 合金層の磁化過程（計算、メスバウアー）
[4-1,2]

Fe/FeGd/Fe 三層膜における FeGd 合金層は Fe の 3d モーメントと Gd の 4f、5d のスピンモーメントの反強磁性交換結合によってフェリ磁性体になっている。合金中の Fe、Gd の磁気モーメントの交換相互作用は Fe-Fe、Gd-Gd の強磁性結合、Fe-Gd の反強磁性結合を考慮する必要がある。三層膜中の FeGd 合金層の組成比を $\text{Fe}_{60}\text{Gd}_{40}$ とした場合 Gd が補償組成よりも多いため、Fe モーメントの総和よりも Gd モーメントの総和は多い。よって FeGd 合金層の正味磁化は Gd モーメントの方向と同じである。上下の強磁性層との界面においては、強磁性層の Fe が合金層の Fe とコンタクトする状況では互いのモーメントは強磁性結合、Gd とコンタクトする場合は反強磁性結合である。界面においても Gd と強磁性層の結合が優勢であるので、上下の強磁性層と FeGd 合金層の正味磁化、Gd モーメントは反平行状態、Fe モーメントは平行状態が外部磁場の無い場合の安定状態である。

図 4-1 に Fe/FeGd/Fe 三層膜の磁化過程の概念図を示す。上下 Fe 層の磁化が合金層の磁化よりも大きい場合、Fe 層が磁場方向を向く。図において上下の Fe 層の磁化と外部磁場の方向は同じである。弱磁場領域においては上記の通り Gd、Fe モーメントはそれぞれ磁場に対して反平行、平行配列になる。その結果正味磁化も磁場に反平行方向を向く。しかし外部磁場を強め、スピントロップ磁場 H_{sf} に達したときに各磁気モーメントが回転し始める。その磁場 H_{sf} は Fe-Gd モーメント間に働く交換相互作用エネルギーよりも十分に小さい。磁場をさらに強めると Gd、Fe モーメントが、それぞれ磁場に対して平行、反平行配列になる。

この磁化過程について Motokawa と Dohnomae は

- (1) FeGd 合金中の Fe 原子、Gd 原子を仮想的な FeGd 単一原子として扱う
- (2) Fe 層は多結晶、FeGd 合金層はアモルファス構造であるが各層を 2 \AA のサブレイヤーに区切る

(3) 各原子層内で磁区を形成せず、モーメントの向きは一様

という仮定に基づいて上下の Fe 層の膜厚が等しい Fe/FeGd/Fe の磁化について、FeGd 合金中の仮想 FeGd 原子間の交換定数 J_{FeGd} を変数として解析的に磁気構造を決定している。

Fe、FeGd 単層膜の磁化測定から見積もった 2 Å のサブレイヤーの磁化を m_{Fe} と m_{FeGd} とし、Fe-Fe 間の交換定数は有効場近似によって

$$J_{\text{Fe}} = \frac{3k_B T_c N_{\text{Fe}}}{2m_{\text{Fe}}^2} \quad (4-1)$$

となる (k_B : ボルツマン定数、 T_c : キュリー温度、 N : 数密度)。界面の Fe-FeGd 間の交換定数は

$$J_I = \frac{(J_{\text{Fe}} + J_{\text{FeGd}})}{2} \quad (4-2)$$

である。図 4-2 においてサブレイヤーの磁化と磁場に対する角度の定義を示す。Fe 層は k 層のサブレイヤーに分割され、最表面のサブレイヤーを第 1 層、界面に接する層を第 k 層と定義される。また FeGd 層は $2h$ 層に分割され、中心に位置する層を第 1 層、界面に接する層を h 層とする。Fe の最表面層の第 1 層 m_{Fe} と外部磁場のなす角度を ϕ 、 $(i-1)$ 層目と i 層目の角度を ϕ_i とする。FeGd 層も同様に中心に位置する第 1 層の m_{FeGd} と外部磁場のなす角度を ψ 、 $(j-1)$ 層目と j 層目の角度を ψ_j とした場合、三層膜の交換エネルギーの総和は

$$E_{\text{ex}} = -J_{\text{Fe}} m_{\text{Fe}}^2 \sum_{i=1}^{k-1} \cos \phi_i - J_{\text{FeGd}} m_{\text{FeGd}}^2 \sum_{j=1}^{h-1} \cos \psi_j - \frac{1}{2} J_{\text{FeGd}} m_{\text{FeGd}}^2 + J_I m_{\text{Fe}} m_{\text{FeGd}} \cos \left(\phi + \sum_{i=1}^{k-1} \cos \phi_i + \psi + \sum_{j=1}^{h-1} \cos \psi_j \right) \quad (4-3)$$

となる。また Zeeman エネルギーは

$$E_Z = -H \left[m_{\text{Fe}} \left\{ \cos \phi + \sum_{n=1}^{k-1} \cos \left(\phi + \sum_{i=1}^n \phi_i \right) \right\} + m_{\text{FeGd}} \left\{ \cos \psi + \sum_{n=1}^{h-1} \cos \left(\psi + \sum_{j=1}^n \phi_j \right) \right\} \right] \quad (4-4)$$

で与えられる。磁区の生成、磁気異方性、系のエントロピーを無視した場合系全体のエネルギーを考慮すると全エネルギーは

$$E_{tot} = E_{ex} + E_Z \quad (4-5)$$

で表される。ある磁場において全エネルギーを最小にする一連の ϕ_i 、 ψ_i を数値計算によって求め、得られた解からある磁場での三層膜全体の磁化は

$$M = 2m_{Fe} \left\{ \cos \phi + \sum_{n=1}^{k-1} \cos \left(\phi + \sum_{i=1}^n \phi_i \right) \right\} + 2m_{FeGd} \left\{ \cos \psi + \sum_{n=1}^{h-1} \cos \left(\psi + \sum_{j=1}^n \phi_j \right) \right\} \quad (4-6)$$

となる。この計算法は Camley と Tilley による手法 [4-3]が元になっている。彼らは Fe/Gd 多層膜のspin配列を自由エネルギーの基底状態を系のエントロピーを含めて計算することによって導いている。しかし Motokawa と Dohnomae の方法はエントロピー項を除外しているため、計算結果は絶対零度のspin配列を与える。図 4-3 は室温における実験による磁化曲線と計算による磁化曲線である。計算は実験で得られた磁化曲線の折れ曲がり観測される磁場 H_{sf} (スピントロップ磁場) や残留磁化の値を良く再現している。彼らは様々な膜厚をもった Fe/FeGd/Fe 三層膜で実験と計算を行っており、いずれも良い一致を示している。よって室温において磁区の生成、磁気異方性の無い Fe/FeGd/Fe 三層膜では、Motokawa と Dohnomae らが示している仮想 FeGd サブレイヤーの磁化が Fe 層界面から離れるにつれて磁場方向からねじれる磁気構造モデルは妥当であると考えられる。彼らはこの磁気構造モデルを fan spin structure と呼んだ。また Dohnomae は Fe 層との界面付近に ^{57}Fe を含んだ FeGd 合金層を有する Fe/FeGd/Fe 三層膜と FeGd 層の中央部付近に ^{57}Fe を含んだ合金層を有する Fe/FeGd/Fe 三層膜の二つの試料についてメスバウアー分光測定を行った。 ^{57}Fe の内部磁場の存在による 6 本のスペクトル強度比から Fe(70 Å)/GdFe(200 Å)/Fe(70 Å)三層膜の FeGd 合金層内において外部磁場を印加した場合、Fe 層との界面付近では正味の FeGd モーメントが外部磁場方向と反平行配列し、FeGd 合金層中央では磁場方向と平行に近い配列を示した。

FeGd 単層膜の面内磁化安定状態 (計算、AMR) [4-4]

同時蒸着によって作られた FeGd 合金薄膜は面内において一軸異方性が自然発生的に生じることが知られている [4-5]。2 つの蒸着源を含む平面と試料基板が交わった直線方向に困難方向、それに直交する方向に容易方向となる。このような FeGd 膜の面内方向に磁場 H を印加したときの磁化ベクトル M とした場合の磁気エネルギーは

$$E(\theta) = K \sin^2 \theta - HM \cos(\theta - \psi) \quad (4-7)$$

と与えられる (K : 異方性係数、 θ : 磁化容易軸と磁化のなす角度、 ψ : 磁化容易軸と磁場のなす角度)。異方性係数 K は磁化困難軸方向に磁場を印加した際の飽和磁場 (異方性磁場) H_a 、飽和磁化 M_s を用いて $K = H_a M_s / 2$ で表される。この関係を用いて式 4-7 を無次元化すると

$$E_{dl}(\theta) = \frac{1}{2} \sin^2 \theta - \frac{H}{H_a} \cos(\theta - \psi) \quad (4-8)$$

となる (ただし $E_{dl} = E / H_a M$)。Montaigne らは式 4-8 に基づいて印加磁場/異方性磁場の比、 H/H_a の値を場合分けして ψ を 360 度変化させたときの、FeGd 合金の磁化の安定方向 θ を計算した。

$H \geq H_a$ の領域では磁場が十分に強いため各 ψ において E_{dl} は一つの安定状態をとり、磁場方向に磁化がほとんど追従するような変化をすることが確認された。一方で、 $H < H_a / 2$ の弱い磁場領域では磁化が容易軸に固定された状態になり、 ψ を変化しても $\theta = 0$ 周りで微小振動を起こすことが明らかとなっている。しかしながら $H_a / 2 \leq H < H_a$ の領域では磁場方向によっては系のエネルギーが最小値ではない準安定状態に磁化方向が存在することが図 4-4 のように示されている (以下図 4-4 の説明)。 $0^\circ < \psi \leq 90^\circ$ に磁場領域では磁化は $\theta = 0^\circ$ の容易方向が作るポテンシャルウェル (AW1) に安定状態を見つける (a)。磁場方向 ψ_a^m において $\theta = 180^\circ$ の容易方向がつくるポテンシャルウェル (AW2) が生成され、 90° を超えたところで AW2 は AW1 よりも安定なエネルギー状態になる。それゆえに AW2 へ磁化配列の移動を行ったほうが系全体のエネルギーは低くなるが、ポテンシャル障壁を越えることができずに準安定な AW1 に磁化がとどま

っている状態が存在する (b)。磁場方向 ψ_a^m において磁化は障壁を超えて AW2 へ不連続な移動を行う (c)。 ψ を 180° に近づけるにしたがって磁化は $\theta = 180^\circ$ の容易方向に向き、エネルギーは安定な状態になる。磁場方向 ψ の変化に対する磁化方向、エネルギー状態はそれぞれ (d)、(f) に示されている。図中 (f) は異方性磁気抵抗 (AMR) 曲線の計算結果である。電流パスが磁化容易軸にある場合、磁化が容易軸方向および困難軸方向にあるときの抵抗値をそれぞれ $R_{//}$ 、 R_{\perp} と表す。その差を $\Delta R = R_{//} - R_{\perp}$ と定義すると、磁場方向 ψ における磁化の向き ($\theta(\psi)$) によって磁気抵抗 (MR)、AMR は

$$\text{MR} \quad R(\psi) = R_{\perp} + \Delta R \cos^2[\theta(\psi)] = R_{//} - \Delta R \sin^2[\theta(\psi)] \quad (4-9)$$

$$\text{AMR} \quad \bar{R}(\psi) = \frac{R(\psi) - R_{//}}{\Delta R} = -\sin^2[\theta(\psi)] \quad (4-10)$$

で表される。磁化が容易軸方向、困難軸方向に存在するとき、それぞれ AMR 値は 0、-1 になる。図中 (f) に示す AMR 値がエネルギー的に最も不安定な ψ_a^m において -1 に達しないことは完全に $\theta = 90^\circ$ にならないことを示している。

彼らはこの計算による結果を実験によって確かめている。膜厚 100 nm の $\text{Gd}_{40}\text{Fe}_{60}$ 合金の AMR 曲線を図 4-5 に示す。測定温度は 100 K、磁場は 200、500、2000 Oe の条件で測定が行われた。500 および 2000 Oe の AMR 曲線は最小値が -1 に達しているために十分に強い磁場領域 ($H \geq H_a$) で実験が行われていることを示している。しかし 200 Oe では曲線の形が他と異なり、図 4-4 (f) で示された形状になっている。また最小値から推定しても磁場は $H_a/2 \leq H < H_a$ の領域にあることが分かる。実験結果は計算で示された不連続な磁化移動が生じないことを示している。彼らは AW1 から AW2 のポテンシャル障壁は 200 Oe、100 K の条件において十分に低いとしている。

GdFe/TbFe 二層膜における GdFe 磁化の安定状態(計算、AMR)[4-4,6]

単層膜同様に一軸異方性がついた GdFe 合金を含む GdFe/TbFe 二層膜に磁場 H を印加したときの磁化ベクトルの状態は図 4-6 のように表され

る。TbFe 合金についても GdFe 合金と同様に O_x 方向の一軸異方性がつけられている。 O_x-180° は容易軸に対応する。界面における GdFe サブレイヤーは TbFe によって強く O_x 方向にピン止めされている。界面から遠ざかるにつれピン止め効果は少なくなり、サブレイヤー磁化は磁場方向にねじれる。厚さ t の GdFe 層の表面から任意の深さ z に存在するサブレイヤーの交換エネルギー、異方性エネルギー、Zeeman エネルギーの総和は

$$E = \int_0^t \left[A \left(\frac{d\theta(z)}{dz} \right)^2 + K \sin^2 \theta(z) - HM \cos[\theta(z) - \psi] \right] dz \quad (4-11)$$

で表される。交換エネルギーのスティフネス定数 A 、異方性係数 K として、交換距離 $\lambda = (A/K)^{1/2}$ 、 $H_a = 2/M_s$ を用いて式 4-11 を無次元化すると

$$E_{dl} = \frac{E}{\sqrt{AK}} \int_0^{t/\lambda} \left[\left(\frac{d\theta(\xi)}{d\xi} \right)^2 + \sin^2 \theta(\xi) - 2 \frac{H}{H_a} \cos[\theta(\xi) - \psi] \right] d\xi \quad (4-12)$$

となる。ただし $\xi = z/\lambda$ である。式 4-12 に基づいて Montaigne らは単層膜の場合に考慮した H/H_a に加え、 t/λ の値を場合分けして ψ を 360 度変化させたときの GdFe 合金の平均的な安定方向 $\tilde{\theta}(z)$ を計算している。その結果、磁化配列は図 4-7 の相図に示されるように A から D の 4 つのグループに分類できることが示された。以下に図 4-8 に示されている $t/\lambda = 6$ 、 $H/H_a = 1, 0.6, 0.4, 0.2$ の場合について計算された磁化配列、エネルギー、AMR について説明する。

$H/H_a = 1$ の場合 (図 4-8 (a)、グループ A)、 $\psi = 0^\circ$ において全てのサブレイヤーの磁化は $\theta = 0^\circ$ に向く。そのためエネルギーは最も安定、AMR は 0 になる。磁場方向を回転 (反時計) すると σ^+ (反時計) プロット磁壁が生成する。 $\psi = 90^\circ$ までは平均磁化が連続的に回転する。 $\psi = 90^\circ$ をわずかに超えたところで $\theta = 90^\circ$ になり、AMR が最小値になる。 $\psi = 90^\circ$ から 180° まではエネルギーウェル+ (CW^+) の存在によってエネルギーが一定となる。 $\psi = 180^\circ$ では AMR は 0 にならない。これは磁壁の存在を意味している。 $\psi = 180^\circ$ を超えると σ^- (時計) プロット磁壁のエネルギー準位が生成されるが、 σ^+ と σ^- のポテンシャル障壁により準安定な σ^+ の状態を保つ。さらに磁場を回転するとエネルギーは増大し続け、最終的に $\psi = 360^\circ$ に近い角度にある、 σ^- の準位に移動する。しかし $\psi = 180^\circ$ において障壁を越え

るエネルギーがあれば、系全体のエネルギーが低いエネルギーウェル (CW⁻) の準位に移動し、徐々にエネルギーを安定化させながら σ^- の磁壁をつくる。

$H/H_a=0.6$ の場合 (図 4-8 (b)、グループ B) ほとんど $H/H_a=1$ と変わらないが、一軸異方性の効果がより強くあらわれている。異方性の効果によって $\psi=90^\circ$ での磁壁のねじれが少ないため AMR は $H/H_a=0.6$ の場合の 2/3 程度になっている。また σ^+ から σ^- への移動も $\psi=270^\circ$ で生じている。

$H/H_a=0.4$ の場合 (図 4-8 (b)、グループ C) より強く異方性の効果があらわれ、磁化はほぼ $\theta=0^\circ$ または 180° の容易軸方向にしか存在できない。これは GdFe 単層膜の安定状態で述べたポテンシャルウェル AW1、AW2 の効果に対応する。さらに $H/H_a=0.2$ の場合 (図 4-8 (b)、グループ D) の場合、磁場を回転しても磁化方向は $\theta=0^\circ$ に固定されたままである。これは一方のポテンシャルウェルに局在した状態から移動できないことを示している。

彼らは AMR の計算を実験によって確かめている。Tb₅₅Fe₄₅ (50 nm) /Gd₄₀Fe₆₀ (100 nm) 二層膜の AMR 曲線を図 4-9 に示す。測定温度は 50 K、磁場は (c) 100、(f) 150、(i) 300 Oe の条件で測定が行われた。それらの磁場はグループ C、B、A に対応している。計算と実験はよく一致していることが分かる。彼らは計算、実験結果から、GdFe 磁化の安定状態は Zeeman エネルギーと異方性エネルギーの競合で生じる AW (異方性ウェル) と Zeeman エネルギーと交換エネルギーの競合で生じる CW (キラリティーウェル) のどちらか一方、もしくは両方の影響を系の置かれた温度、磁場に応じて受けると説明した。

XMCD による GdFe/TbFe 二層膜の元素選択磁化過程 (XMCD) [4-7]

Mangin らは ESRF のビームライン ID12B において Tb₅₅Fe₄₅ (3 nm) /Gd₄₀Fe₆₀ (100 nm) 二層膜の XMCD スペクトル、ヒステリシス測定を行っている。図 4-10 に示すように Fe の L 吸収端、Gd、Tb の M 吸収端を用いて偏光反転にともなう全電子収量の差を測定している。XMCD スペクトルのピーク強度の符号から Fe が磁場に対して平行、Gd、Tb が反平行配列していることを確かめ、内殻吸収 XMCD の軌道とスピン総和則から磁気モーメントの評価を行っている。

図 4-11 (a) SQUID によるマクロ磁化過程と (b) XMCD ヒステリシスの元素選択磁化過程から図 4-12 の GdFe/TbFe 界面の磁化反転モデルを提

案している。二層膜は面内に一軸異方性が付けられており、XMCD 測定の際は容易軸方向にそって磁場が印加されている。マイナス方向へ磁場を印加し、 $-HR_1$ に達すると磁化全体の 8 割に相当する磁化が反転することが SQUID 測定の結果から分かる。この反転は GdFe 合金に由来するものであるが XMCD ヒステリシスからは $-HR_1$ において飽和状態を保っている (: Fe、 : Gd、 : Tb)。これは軟 X 線による XMCD は表面 10 nm 程度の磁化過程に敏感であるために、TbFe 層にピン止めされた GdFe の付近の磁気構造を反映したシグナルを検出しているためであると説明している。このことはピンされた界面から深い方向には交換エネルギーを少なくするようにブロッホ磁壁が形成されていることを示唆している (図 4-12 (b))。

$-HR_1 < H < -HR_2$ の領域において SQUID の磁化測定結果は滑らかな磁化の減少を示している。これは界面から離れた磁壁から順に磁場方向に反転することで磁壁の厚みが減少する圧縮効果によるものであると説明している。一方 XMCD の結果は $-HR_1 < H < -HR_2$ の領域において Gd だけでなく Tb の減少を示唆している。また Gd 磁化の減少は Tb よりも早く生じることが分かる。この現象について GdFe から TbFe への磁壁の進入、つまりピンされている方向から、ねじれた成分を持った磁壁が徐々に TbFe 層に押し込まれる状態が生じているとして説明している。 $-HR_1 < H < -HR_2$ の磁化過程は磁壁の圧縮と押し込みが同時に生じていると考えられる。(図 4-12 (c))。

$-HR_2$ に達すると SQUID、XMCD の両方が Tb、Gd の急な反転を示している。これは界面の磁壁が 図 4-12 (d) から (g) のように消滅することによって生じている。

4-2 測定試料

4-1 節で述べたように、Fe/FeGd/Fe 三層膜の FeGd 磁化の向きは印加磁場とスピントロップ磁場 H_{sf} の関係によって変化する。 $H < H_{sf}$ の領域では磁場と反平行方向 (aligned)、 $H = H_{sf}$ で磁場とねじれるように回転を始め (twisted)、磁場を強めるにしたがって徐々に磁場に平行方向に向くと考えられる。XMCD、RXMR 実験で Gd の磁化過程を調べるには ± 1500 Oe の範囲内で aligned から twisted の変化が生じ、なおかつある程度飽和状態に近づく試料を用いる必要がある。この理由は SPring-8 BL39XU の 4

軸回折計の χ サークルに電磁石を取り付ける際の耐荷重の制約から小型の電磁石を使用せざるを得ず、そのため印加磁場を大きく取れないためである。この問題を解決すれば、磁気円二色性実験が常伝導磁石で 20 kOe、超伝導磁石で 100 kOe まで印加可能であるので、磁気反射率測定実験が可能な磁場領域は十分に増やすことが可能である。放射光測定を行う試料として

**Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å] / Si (111)
Fe₆₀Gd₄₀[1000 Å] / polyimide**

を選択した。三層膜は RXMR 実験用、FeGd 単層膜は XMCD 実験用である。三層膜の磁化過程の詳細について図 4-13 に示す。 $H_{sf} \sim 900$ Oe 程度であり、上記の条件を満たしている。

4-3 磁気円二色性スペクトルの測定条件と結果

FeGd 単層膜 (Fe₆₀Gd₄₀[1000 Å] / Polyimide) の Fe-K (7112 eV)、Gd-L₃ 端 (7243 eV) 近傍で XMCD スペクトル測定を行った。測定時の蓄積リングモードは連続 11 bunch の塊が等間隔に 29 個ある 11 bunch train×29 (通称 C モード) であった。SPring-8 の連続 bunch 間隔は 1.966 nsec であるので train 通過幅 19.66 nsec、train 間隔 145.5 nsec である。蓄積電流は 0.313 mA/bunch、全蓄積リング電流は 100 mA であった。Top-up 入射は 1 分間隔である。図 4-14 に時間構造を示す。測定結果を図 4-15 に示す。Fe のスペクトルは 7090 eV から 7160 eV を 0.5 eV ステップで測定した。吸収量を稼ぐために polyimide 基板を 4 枚に折りたたんで X 線を照射した。Gd のスペクトルは 7225 eV から 7275 eV を 1eV ステップで測定した。試料は 2 つ折りにした。厚さ 0.45 mm のダイヤモンド移相子を 220Laue 配置で用いた。Fe、Gd の XMCD スペクトル測定は ± 6000 Oe の磁場を印加して測定を行った。

Fe のスペクトルは低エネルギー側に正、高エネルギー側に負の微分型のピークを示す。また Gd のスペクトルは負のベル型のピークを示す。これらのスペクトルをモーメントが磁場方向を向いている状態の Fe あるいは Gd のスペクトルと比較することで各元素のモーメントの磁場に対する方向を決定した。図 4-16 (a) に Fe/Au 多層膜の Fe-K 端近傍の XMCD

スペクトルを示す。多層膜には飽和に達する十分な磁場を印加しているので Fe モーメントは磁場方向を向いている。スペクトル形状は低エネルギー側に負、高エネルギー側に正の微分型のピークを示している。この形状は FeGd 単層膜の Fe のスペクトルと反対であるので、FeGd 単層膜中の Fe モーメントは磁場に対して反平行方向に配列していることが分かる。図 4-16 (b) に Gd/Cu 多層膜の Gd- L_3 端近傍の XMCD スペクトルを示す。Gd モーメントは磁場方向を向いており、負のベル型のスペクトルを示す。Gd/Cu のスペクトルは 20 K で測定されているので磁気モーメントが大きくなっており、ピークも FeGd 単層膜より大きくなっているが、この形状は FeGd 単層膜の Gd のスペクトルと同じ符号であるので、FeGd 単層膜中の Gd モーメントは磁場に対して平行方向に配列していることが分かる。この結果から FeGd 合金膜は大きさが異なる Fe モーメントと Gd モーメントが反強磁性的に結合したフェリ磁性体であることが分かる。Gd モーメントが磁場方向を向いていることから $\text{Fe}_{60}\text{Gd}_{40}$ 合金試料は正味磁化が Gd モーメントと同じ方向を向いていると考えてよい。この結果は $\text{Gd}_x\text{Fe}_{100-x}$ (1500 Å) の補償組成は $x=27.9$ であるとしている Mimura らの報告と一致する [4-8]。(光学遷移、磁場の定義などは 2 章を参照)

4-4 磁気反射率プロファイルの測定条件と結果

Fe/FeGd/Fe 三層膜 (Fe[140 Å] / $\text{Fe}_{60}\text{Gd}_{40}$ [300 Å] / Fe[140 Å] / Si (111)) の Gd- L_3 端 (7243 eV) で RXMR プロファイル測定を行った。蓄積リングモード、移相子は XMCD スペクトル測定の設定と同じである。 $2\theta=0.2\sim 2.4^\circ$ ($q_z=0.0128\sim 0.154 \text{ \AA}^{-1}$) の角度領域を $0.2\sim 1^\circ$ 、 $1\sim 2.4^\circ$ に分割して 0.005° ステップで測定した。1 ステップあたり各ヘリシティ-30 秒間の計数をおこなった。 $0.2\sim 1^\circ$ の範囲では散乱強度が強かったため、厚さ 25 μm の Mo アテネータを使用した。しかし、強度調整が不十分で $0.2\sim 1^\circ$ の測定は APD が飽和してしまい数え落とし補正がうまくできずデータとして利用できないことがわかった。よって $1\sim 2.4^\circ$ の測定結果をデータとして利用する。この領域ではアテネータなしで、APD カウントはおおむね 2×10^6 cps であった。使用した APD は 3×10^6 cps 程度までの線形性が確認されている。磁場は ± 500 Oe、 ± 1500 Oe の条件で印加した。それぞれの磁場の値は図 4-13 に示すように三層膜の磁気構造が aligned、twisted の状態に対応する。 $+500$ 、 -500 Oe でのヘリシティ-差強度、 $+1500$ 、

-1500 Oe でのヘリシティー差強度プロファイルの測定結果を図 4-17 に示す (P^+ 、 P^-)。また 1500、500 Oe それぞれの磁場での磁場反転の差強度から得られる aligned state (500 Oe)、twisted-state (1500 Oe) の磁気反射率プロファイルを図 4-18 に示す ($(P^+ - P^-) / 2$)。

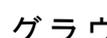
図 4-17 に示すように大きいところで電荷散乱強度の 1/100 程度のヘリシティー差強度シグナルが測定できている。また磁場を反転して測定した差強度プロファイルはほぼ x 軸 ($P=0$) に対して対称になっている。この結果は測定されたシグナルは誤差ではなく磁気モーメントが寄与する散乱であることを示している。

図 4-18 に示す RXMR プロファイルの形状は式 2-8 に示すように、深さ方向の電荷散乱振幅の変調のフーリエ変換と、磁気散乱振幅の変調のフーリエ変換の積に比例する。磁気散乱振幅の深さ構造は、まず電荷構造を反射率測定から決定し、その後で磁気散乱振幅の変調モデルを仮定して RXMR の計算を行い、実験とフィッティングすることで決定する。そのため、磁気構造解析の前提として反射率により電荷構造を詳細に決定する必要がある。実験に用いた Fe/FeGd/Fe 三層膜の電荷反射率測定結果と計算結果について図 4-19 に示す。黒丸は測定値、実線は最表面 Fe 層に酸化膜として Fe_2O_3 を仮定した計算値、破線は酸化層を仮定しない場合の計算値である。求められた膜厚、界面の rms ラフネス、数密度を表 4-1、4-2 に示す。Fe/FeGd/Fe 膜の設計の通り、酸化膜を仮定しない場合、 $2\theta=1\sim 2^\circ$ の反射率強度を再現することができない。一方、約 33 Å の Fe_2O_3 層を仮定した場合には実験値を比較的よく再現することができた。しかし表面の酸化膜の存在は仮定であり、他の要因を仮定した場合でも実験を再現できる可能性を否定できない。Fe/FeGd/Fe 三層膜の電荷構造の不確定さにより、FeGd 層の詳細な磁気構造解析を進めても信頼性のある結果を得ることができないと判断した。しかし 500、1500 Oe の相似的なプロファイルの変化（振動周期はほぼ同じで振幅だけが変化）から、深さ方向のドラステックな磁気構造変化は生じていないことが定性的に予想される。また 1500 Oe よりも 500 Oe のプロファイルの振幅が大きいことは、磁気モーメントの磁場方向成分が 500 Oe の磁場を印加した場合の方が大きい、つまり Gd モーメントの配列は Motokawa と Dohnomae らのモデルに示されるように 500 Oe では aligned、1500 Oe では twisted になっている可能性がある。ここまでで定性的に Gd 磁化は深さ方向の構造を保持したまま一体となって磁場方向から拭れることが推察できた。

4-5 磁気反射率ヒステリシスの測定条件と結果

Gd- L_3 端 (7243 eV) での RXMR 強度の磁場依存性を測定することで Fe/FeGd/Fe 三層膜の Gd 選択的な磁気ヒステリシスを測定した。蓄積リングモード、移相子は磁気反射率測定の設定と同じである。 $2\theta=1.6^\circ$ ($q_z=0.102 \text{ \AA}^{-1}$) の鏡面反射配置に散乱角を固定した。磁場を X 線入射ベクトルに対して試料面内において平行方向に印加する平行配置 $H_{//}$ では  4-18 の点線に沿った強度変化を測定することになる。 $+1500 \text{ Oe} \rightarrow 0 \text{ Oe} \rightarrow -1500 \text{ Oe} \rightarrow 0 \text{ Oe} \rightarrow +1500 \text{ Oe}$ の順に 25 Oe 刻みで磁場を掃引し RXMR 強度を測定した。電磁石電源のポテンシオメータを手動で調整して磁場を設定した。1 点あたり各ヘリシティー 15 秒の計数を 2 回繰り返した。平行配置の測定後、電磁石を 90° 回して χ サークルに取り付け、磁場を試料面内で入射 X 線に対して垂直に印加する垂直配置 H_{\perp} で、同様の方法によりヒステリシス測定をおこなった。これらの測定を測定 A と呼ぶことにする。

また試料を面内で 90° 回転して設置し、上記の測定における X 線入射方向に対し、試料面内で直交する試料配置で、平行および垂直配置の RXMR ヒステリシス測定を行った。蓄積リングモードは上記の 11 bunch train \times 29 とは異なり、160 bunch train が全周において 12 個ある multi-bunch (160 bunch train \times 12) モードでおこなった。train 通過幅 315 nsec、train 間隔 85 nsec である。蓄積電流 0.313 mA、全蓄積リング電流は 100 mA であった。 4-20 に時間構造を示す。円偏光の発生に厚さ 2.7 mm ダイアモンド移相子を 220 Laue 配置で用いた。 $2\theta=1.42^\circ$ ($q_z=0.091 \text{ \AA}^{-1}$) の鏡面反射配置に散乱角を固定し。 $+1500 \text{ Oe} \rightarrow 0 \text{ Oe} \rightarrow -1500 \text{ Oe} \rightarrow 0 \text{ Oe} \rightarrow +1500 \text{ Oe}$ の順に測定した。1 点あたり各ヘリシティー 10 秒の計数を 1 回行った。これらの測定を測定 B と呼ぶことにする。

測定 A で得られた RXMR ヒステリシスの結果を  4-21 (a) に示す。黒丸、白丸はそれぞれ平行、垂直配置で測定した RXMR 偏極率 $P_{//}$ 、 P_{\perp} である。RXMR 偏極率は磁性に関係しないアーティフィシャルなバックグラウンドのために $|P(+H)| \neq |P(-H)|$ となっている。これは  4-17 に示す \pm 磁場でのヘリシティー差強度のプロファイルの平均はわずかに零から偏っていることから理解できる。 4-18 の RXMR プロファイルは \pm 磁場でのヘリシティー差強度の差をとって平均化することで磁性に関係しないアーティフィシャルなバックグラウンドの偏りをなくしているが、ヒステリシス測定ではその偏りを含んだシグナルを測定することになる。そのため両ヒステリシスは縦方向にシフトしていると考えられる。ヒス

テリシスの平均値が零になるように補正を行ったグラフを図 4-21(b)に示す。

測定 A の磁気反射率測定結果に基づいて、Fe/FeGd/Fe 三層膜中の Gd 磁化がどのような挙動をするか考察する。磁場を印加した順番(+1500 Oe → 0 Oe → -1500 Oe → 0 Oe → +1500 Oe) に従って説明を行う。ここからの説明では磁化と磁場方向の関係の混乱を避けるため平行配置の $H_{//}$ 方向を磁場方向と定義する。+1500 Oe において $P_{//}$ はほぼ零、 P は約 0.003 の値を示している。つまり磁化 M は磁場方向に対してほぼ直交していることが示唆される。その状態から磁場を弱めるにつれて $P_{//}$ は零でない値を持ち始め、 P は零に近づいていく。これは Gd 磁化が徐々に磁場方向に向いていくことを示す。800~900 Oe 付近で $P_{//}$ は -0.004 に、 P はほぼ零に到達し、その磁場から 0 Oe までは $P_{//}$ 、 P は共に一定値である。よって 800~900 Oe にて Gd 磁化は磁場方向を向いた後は 0 Oe 付近までその方向を保つことが予想される。0 Oe 近傍は少し複雑なので後で説明する。マイナス磁場領域 (0 Oe → +1500 Oe) においても同様の挙動が示されている。上記の Gd の磁化過程を示す磁気反射率ヒステリシスは $H=800\sim 900$ Oe を境に Gd-aligned、twisted に分けることができることから、図 4-13 に示すマクロ磁化曲線 ($H_{sf}=900$ Oe を境に FeGd 合金-aligned、twisted) と対応することが明らかとなった。

零磁場付近の Gd 磁化の挙動について、正から負 (+1500 Oe → 0 Oe → -1500 Oe) と負から正 (-1500 Oe → 0 Oe → +1500 Oe) の磁場方向の違いによる Gd の挙動について明らかにするために横軸 $P_{//}/P_s$ 、縦軸 P/P_s として Gd 磁化をベクトル表示したプロットをおこなった。 P_s は磁化ベクトルが aligned 状態の $P_{//}$ の値であり、規格化のために用いる。具体的には -500 Oe から -200 Oe での $P_{//}$ の平均値 0.0039 を採用した。図 4-22 (a) は正磁場から負磁場 (+1500 Oe → 0 Oe → -1500 Oe)、(b) は負磁場から正磁場 (-1500 Oe → 0 Oe → +1500 Oe) のプロットである。図中に示す磁場の値は、その近くにある周囲よりも大きなシンボルにおける値を示している。グラフの枠を試料表面に対し正対して見た上面図とすると、磁場方向は横軸 $P_{//}/P_s$ に沿ってプラス方向である (図中左から右)。面内の Gd 磁化ベクトルを M 、プラス磁場方向を基準角として、磁場と磁化ベクトルのなす角を α としたとき、ある磁場 H での $P_{//}$ 、 P はそれぞれ $M\cos\alpha$ と $M\sin\alpha$ に対応する。よって座標 ($M\cos\alpha(H)$, $M\sin\alpha(H)$) の推移は Gd 磁化ベクトルの軌跡を表す (詳細は 3 章を参照)。

まず図 4-22 (a) について注目する。+1500 Oe 印加したとき Gd 磁化ベクトルは磁場にほぼ直交している (0, $+M_y$)。磁場を弱めると反時計方向に

ベクトルが回転し 800 Oe 付近 (900 Oe から 3、4 つめの点) でほぼ磁場に対して反平行方向となる $(-M_x, 0)$ 。800 Oe より小さい正の磁場領域では反平行状態を維持したまま微妙に振動するが、零磁場において Gd 磁化ベクトルは突然磁場方向から $\alpha \approx 135 \sim 145^\circ$ の方向に大きく傾く $(-M_x, +M_y)$ 。磁場反転にともなって、原点对称に近いベクトルの磁化反転が生じる $(-M_x, +M_y) \rightarrow (+M_x, -M_y)$ 。マイナス方向の磁場を強めていくと磁化ベクトルは反時計方向に回転し、磁場に対して反平行方向を向く $(M_x, 0)$ 。磁場が -900 Oe 付近 (-975 Oe から 3、4 つめの点) に到達すると時計方向への回転が始まり、-1500 Oe で Gd 磁化ベクトルは磁場にほぼ直交する $(0, -M_y)$ 。図 4-22 (b) の磁化ベクトルの挙動については (a) のプロセスの逆をたどることが図を見れば明らかである。零磁場において磁場印加方向に対して擦れた位置にベクトルが向くことは面内に一軸の磁気異方性が存在することを仮定すると説明ができる。しかし反転は完全な原点对称ではない。この理由は不明である。

測定 B で得られた磁気反射率ヒステリシスの結果を図 4-23 に示す。黒丸、白丸はそれぞれ $P_{//}$ 、 P である。なおこのグラフはバックグラウンドの補正を行っている。平行配置のヒステリシスに着目すると図 4-21 に示す A 配置のヒステリシスと比較して磁気反射率の符号が反転している。これは 2θ を固定した角度における磁気反射率の符号違いが原因である。図 4-18 において測定 A を行った $2\theta = 1.6^\circ$ は +磁場において負の反射率強度を示す。しかし測定 A を行った $2\theta = 1.42^\circ$ は +磁場において正の反射率強度を示す。そのためにヒステリシスの反転が起こる。しかし測定 A、B の垂直配置のヒステリシスの挙動はほぼ一致する。この結果を横軸 $P_{//}/P_s$ 、縦軸 P/P_s としたベクトル表示から考察する。測定 B における P_s は測定 A と同様に -500 Oe から -200 Oe での平均値 -0.0079 を採用した。図 4-24 (a) は正磁場から負磁場 (+1500 Oe \rightarrow 0 Oe \rightarrow -1500 Oe)、(b) は負磁場から正磁場 (-1500 Oe \rightarrow 0 Oe \rightarrow +1500 Oe) のプロットである。

図 4-24 (a) について注目する。+1500 Oe 印加したとき Gd 磁化ベクトルは $\alpha \approx 200 \sim 210^\circ$ にある $(-M_x, -M_y)$ 。磁場を弱めると時計方向にベクトルが回転し 1000 Oe 付近でほぼ磁場に対して反平行方向となる $(-M_x, 0)$ 。1000 Oe より小さい正の磁場領域では反平行状態を維持し、零磁場において Gd 磁化ベクトルは $\alpha \approx 190 \sim 200^\circ$ を向く $(-M_x, -M_y)$ 。マイナス磁場を印加すると、保磁力 -50 Oe で $(-M_x, -M_y) \rightarrow (+M_x, -M_y)$ の反転を生じる。マイナス方向の磁場を強めていくと磁化ベクトルは時計方向に回転し、磁場に対してほぼ反平行方向を向く $(M_x, 0)$ 。磁場が -700 Oe 付近に到達すると時計方向への回転が始まり、-1500 Oe で Gd 磁化ベクトルは

$\alpha \approx 20 \sim 25^\circ$ を向く ($+M_x, -M_y$)。図 4-24 (b) の磁化ベクトルの挙動は (a) のプロセスの逆をたどる。測定 B においても零磁場で磁場印加方向から擦れた方向に磁化ベクトルが向くことが確認された。

測定 A、B において観測された零磁場での磁化ベクトルはそれぞれ特定の方角を向く。零磁場での磁化ベクトルは測定 A では $\alpha \approx 135 \sim 145^\circ$ 、測定 B では $\alpha \approx 190 \sim 200^\circ$ の方角を向くため、それらの方角に磁化容易軸が存在すると考えられる。測定 B は測定 A の状態から試料を面内で 90° 回転しているため、仮定した一軸異方性が存在するのであれば、試料回転に伴い容易軸も 90° 回転する。測定 A と B の零磁場におけるベクトルのなす角度は 90° に近いこと、面内には一軸異方性が存在する可能性が極めて大きい (5章で検証する)。

測定 A、B を比較した場合 Gd 磁化ベクトルの回転方向が逆転する結果が得られた。この現象について、図 4-22、24 のベクトル表示を見易くした模式図、図 4-25、26 を用いて説明する。図中の点線は面内に仮定した容易軸を表し、円は図 4-22、24 に示された円に対応する。また円の中の矢印は Gd 磁化ベクトル、円の外の矢印は磁場の方向と大きさを表している。以下に零磁場から磁場を強め 1500 Oe に到達する磁化プロセスの説明を行う。測定 A、B において零磁場 ($H=0+\delta$) では Gd 磁化ベクトルは容易軸方向を向く、そして磁場を少し印加した $H \leq H_{sf}$ では Gd 磁化ベクトルは磁場に反平行に向く。その際に測定 A の磁化ベクトルは $\alpha \approx 135 \sim 145^\circ$ から $\alpha = 180^\circ$ を向くために反時計方向の回転を生じる。一方、測定 B では磁化ベクトルは $\alpha \approx 190 \sim 200^\circ$ から $\alpha = 180^\circ$ を向くために時計方向の回転を生じる。もし、測定 A で磁化ベクトルが $\alpha \approx 135 \sim 145^\circ$ から時計回転によって $\alpha = 180^\circ$ に到達することを考えた場合、 $\alpha \approx 135 \sim 145^\circ$ に 90° 足した場所 $\alpha \approx 215 \sim 225^\circ$ に存在すると考えられる磁化困難方向を乗り越えなければならない。測定 B において反時計回転を生じると考えた場合も同様である。このような回転は、異方性エネルギーを大きくすると考えられるため不利であると推察される。よって零磁場から $\alpha = 180^\circ$ を向く磁化プロセスは、容易軸が 180° 未満に存在すれば反時計、 180° より大きい場所に存在すれば時計回転になると予想される。磁場が H_{sf} を超え 1500 Oe に達するプロセスにおいて、Gd 磁化ベクトルは測定 A では時計回転、測定 B では反時計回転となる。このプロセスにおける回転も、 $\alpha = 180^\circ$ から異方性エネルギーを低くする方向に回転すると考えると説明することができる。1500 Oe に到達するまでに、測定 A の磁化ベクトルは $\alpha = 180^\circ$ から $\alpha = 90^\circ$ 近くまで約 90° 回転するのに対して、測定 B の磁化ベクトルは $\alpha = 180^\circ$ から $\alpha \approx 200 \sim 210^\circ$ の $20 \sim 30^\circ$ の小さな回転となっている。これは

$\alpha=180^\circ$ から容易軸までの角度の違いによって生じると考えられる。測定 A では $\alpha=180^\circ$ から容易軸の存在する $\alpha\approx 135\sim 145^\circ$ までの角度は $35\sim 45^\circ$ であるのに対し、測定 B では $\alpha=180^\circ$ から $\alpha\approx 200\sim 210^\circ$ の $20\sim 30^\circ$ となっている。 $\alpha=180^\circ$ から容易軸までの区間は異方性エネルギーを減らす方向であるために比較的容易に回転が生じるが、容易軸を超えた回転はエネルギーを増加するので、それまでの区間と比較して回転しにくい。測定 A における $\alpha=90^\circ$ と測定 B における $\alpha=270^\circ$ では測定 B の方が高いエネルギー状態になる。磁場が H_{sf} を超え 1500 Oe に達するプロセスにおいて、一軸異方性の方向は測定 A では Gd 磁化ベクトルの回転を促進する働きをし、測定 B では回転を阻止する働きをされると考えられる。

図 4-25、26 では便宜上ベクトルの軌跡を円で示している。Gd の磁壁やドメインの形成等の磁気構造の変化がなければベクトルの軌跡は円周上をたどる。しかし、実際は図 4-22、24 に示すように H_{sf} より大きな磁場領域では円周上からずれてくる。この理由として界面において磁場と反平行方向に強くピン止めされた Gd モーメントが存在し、磁壁を形成している可能性が考えられる。ピン止めされた成分がある場合ベクトルの軌跡は磁場方向に長軸をもった楕円を描く。図 4-22、24 零磁場のベクトル長さと 1500 Oe でのベクトル長さの比、つまり楕円の長軸と短軸の比から 1500 Oe において全体の $2\sim 3$ 割程度の Gd が界面磁壁を形成していると思積もられる。

4-6 Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd 磁化回転モデル

ここで Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å]三層膜の Gd の磁化プロセス、磁気構造について実験結果から得られたことをまとめる。

- A. 零磁場では磁場に対して傾いた方向に向く、この理由は面内に一軸異方性が生じているからであると推定した。
- B. 零磁場からわずかに磁場を印加すると、Gd 磁化ベクトルは回転を始め磁場に対して反平行方向に向く。その回転方向は異方性エネルギーを安定化する方向であると推定した。

- C. 磁場を強め、800~900 Oe に到達すると回転を始める。マクロな磁化曲線で観測されたスピントロップ磁場 $H_{sf}=900$ Oe に対応する。
- D. 印加磁場が H_{sf} を超えた際の回転方向は異方性エネルギーを安定化する方向であり、印加磁場方向と容易軸が成す角が大きいほど磁化ベクトルの回転角は大きい。
- E. 零磁場では Gd 磁化ベクトルは磁場方向に対してほぼ反平行状態をとる。しかし印加磁場が H_{sf} を超えた状態で界面にピン止めされた Gd が存在するため、磁壁を形成していると考えられる。

以上 A~D を踏まえた Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd 磁化回転モデルを図 4-27 に示す。ただし、図は測定 A の場合について示している。図中 xy 面は試料平面、z は厚さ方向を表す。座標の中に示された太い矢印は Gd 磁化ベクトルの平均的な方向を示している。3 つに区切られた円筒は FeGd 層を表しており、筒の中に示されている矢印は深さ方向に分割された層の Gd 磁化ベクトルである。上下の円筒は磁壁を形成する DW part、中央部は均一に回転する uniform part である。プラス磁場は x 軸方向である。

4 章 参考文献

- [4-1] M. Motokawa and H. Dohnomae: J. Phys. Soc. Jpn. **60** 1355 (1991).
- [4-2] H. Dohnomae: J. Phys. Soc. Jpn. **60** 759 (1993).
- [4-3] R. E. Camley and D. R. Tilley: Phys. Rev. B. **37** 3413 (1988).
- [4-4] F. Montaigne and S. Mangin and Y. Henry: Phys. Rev. B. **67** 144412 (2003).
- [4-5] S. Mangin, C. Belouard, G. Marchal and B. Barbara: J. Magn. Mater. **165** 161 (1997).
- [4-6] Y. Henry, S. Mangin and F. Montaigne: Phys. Rev. B. **69** 140401 (2004).
- [4-7] S. Mangin, C. Bellouard, S. Andrieu, F. Montaigne, P. Ohresser, N. B. Brookes, and B. Barbara: Phys. Rev. B. **70** 014401 (2004).
- [4-8] Y. Mimura, N. Imamura and T. Kobayashi: Jpn. J. Appl. Phys. **17** 1365 (1978).

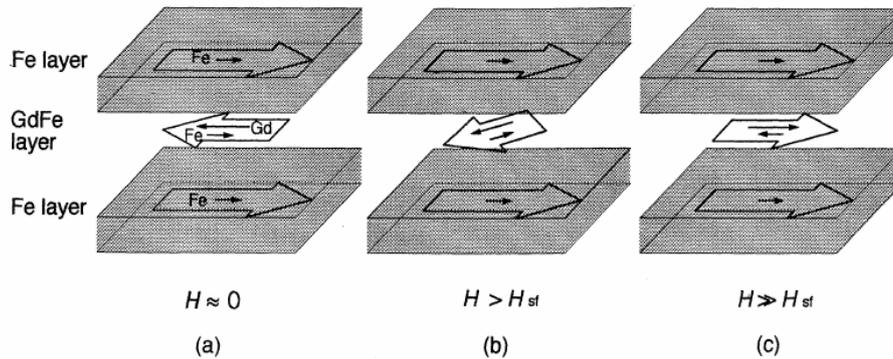


Fig. 2. Schematic magnetization process of a Fe/GdFe-alloy/Fe three layer. Magnetization of GdFe alloy consists of magnetic moments of Gd and Fe, which are antiferromagnetically coupled to each other. (a) the external magnetic field is almost zero. Magnetization of Fe layer (M_{Fe}) and that of GdFe layer (M_{GdFe}) are arranged in antiparallel from the exchange interaction at the interface. (b) M_{GdFe} begins to rotate to the direction of H , when H exceeds a critical field H_{st} . (c) H is large enough to align both M_{Fe} and M_{GdFe} to H itself.

図 4-1. Fe/FeGd/Fe 三層膜の磁化過程の概念図 [4-2]

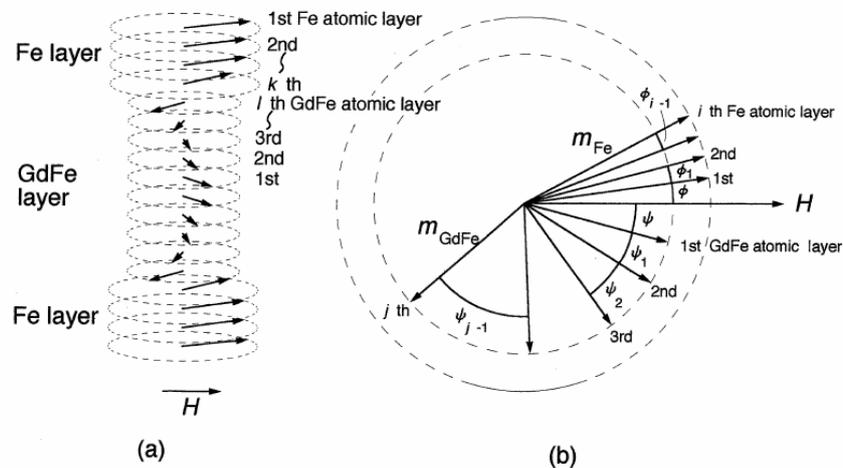


Fig. 5. Model magnetic structure of an Fe/GdFe-alloy/Fe three layer film for an energy calculation. Each magnetic layer are divided into atomic layers. Arrows represent a magnetization of Fe atomic layer m_{Fe} , that of GdFe atomic layer m_{GdFe} , and an external magnetic field H . In both (a) and (b), H is as large as that in Fig. 2(b) ($H > H_{st}$). (a) is a cross sectional view of the film. Atomic layers are numbered as above. (b) is a projected view of (a) to the film plane. Angles between magnetizations of adjacent two atomic layers are denoted as ϕ_i and ψ_j .

図 4-2 FeGd 合金層中のサブレイヤーの磁化と磁場に対する磁化の角度の定義 [4-2]

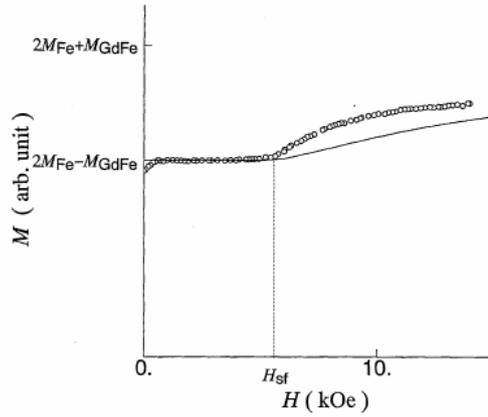


Fig. 3. M - H curve of an Fe(70 Å)/GdFe(125 Å)/Fe(70 Å) three layer film with external fields parallel to the film plane. The experimental result is shown as dots and the calculated result is shown as a solid line. Calculated M is modified by -12% in order that the plateaus of the two curves may agree with each other. The scale of M is indicated by using experimental values of M_{Fe} and M_{GdFe} , which represent saturation magnetizations of Fe(70 Å) and GdFe(125 Å), respectively.

図 4-3. 室温での Fe/FeGd/Fe 三層膜の磁化曲線(丸シンボル)と計算による磁化曲線(実線) [4-2]

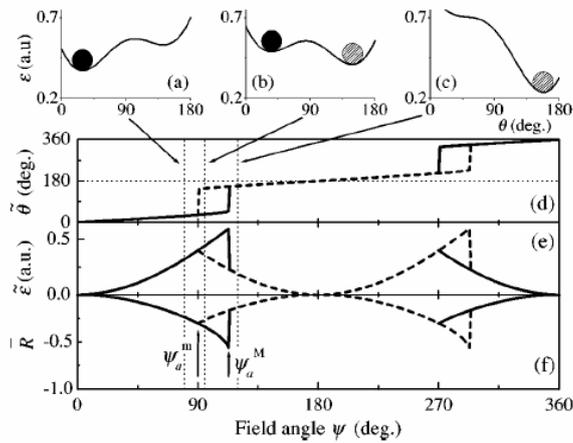


FIG. 1. Results of the model of Sec. III A describing the behavior of a single magnetic layer with homogeneous magnetization in an in-plane rotating field. The reduced field value used is $H/H_a = 0.6$. (a-c) Variation of the normalized energy ϵ [Eq. (2)] as a function of the magnetization angle θ , for different orientation of the applied field: (a) $\psi = 80^\circ$, (b) 95° , and (c) 120° . (d) Possible stable angular positions of the magnetization $\bar{\theta}$, (e) the corresponding normalized energy $\bar{\epsilon} = \epsilon(\bar{\theta})$, and (f) AMR \bar{R} , [Eq. (4)] as a function of the field angle ψ . Solid and dashed lines in (d)-(e) correspond to the first and second anisotropy wells, AW1 and AW2, respectively (see text for details).

図 4-4. FeGd 合金の磁化の安定方向 [4-4]

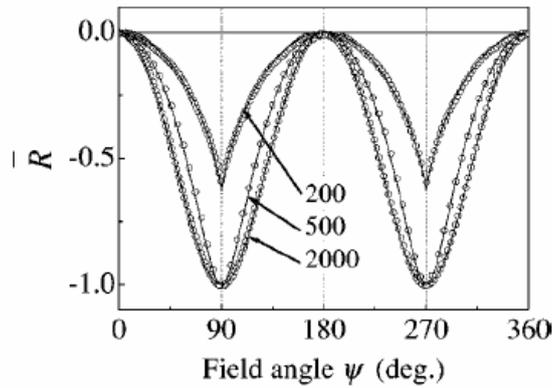


FIG. 2. (Open circles) Normalized AMR curves deduced from measurements at 100 K with applied magnetic fields of 200, 500, and 1000 Oe on a single 100-nm thick $\text{Gd}_{40}\text{Fe}_{60}$ layer. Solid lines are simulations of the experimental data, using the model of Sec. III A and assuming that the system always adopts its ground state magnetic configuration.

図 4-5. $\text{Gd}_{40}\text{Fe}_{60}$ 合金の AMR 曲線 [4-4]

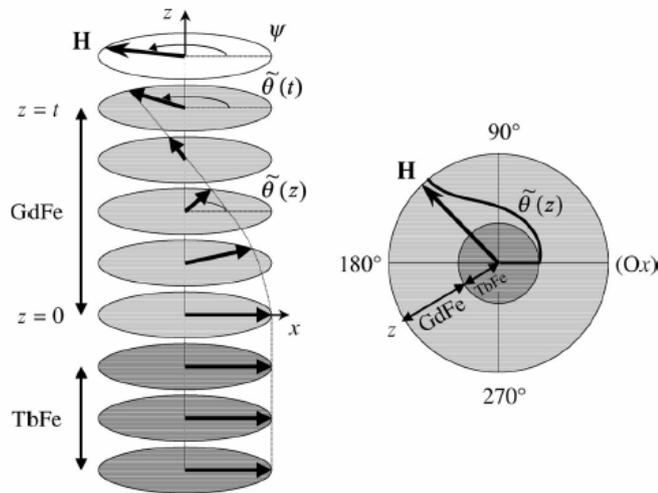


FIG. 3. (Left) Schematic representation of the spin structure forming in the TbFe/GdFe bilayer as the external field \mathbf{H} is rotated counterclockwise an angle ψ away from the easy axis direction Ox . (Right) Polar plot of the corresponding depth dependence of the magnetization angle $\tilde{\theta}(z)$.

図 4-6. GdFe/TbFe 二層膜の磁化ベクトルの状態 [4-4]

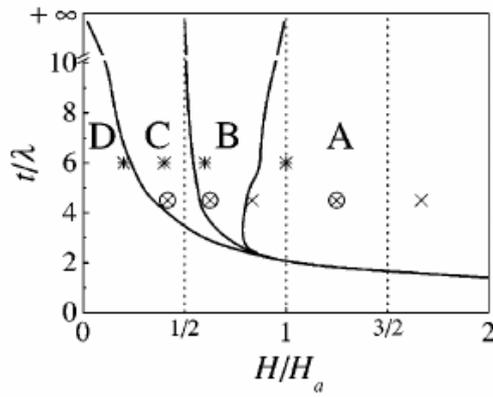


FIG. 6. Calculated phase diagram showing the domain of existence of regimes *A*, *B*, *C*, and *D* as a function of the input parameters t/λ and H/H_a . The stars indicate the simulations of Fig. 5. The crosses correspond to the experimental data of Fig. 8, and the open circles correspond to those experimental data of Fig. 8 that are compared with the model calculations in Fig. 9.

図 4-7. H/H_a 、 t/λ に対する磁気状態の相図 [4-4]

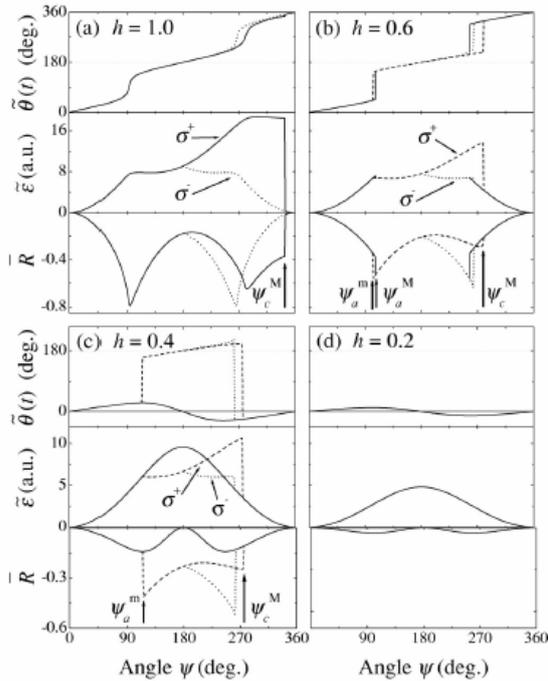


FIG. 5. Results of the model of Sec. IV A, describing the behavior of a spring-magnet structure with $t/\lambda = 6$ in an in-plane rotating field. Four values of the reduced field are considered, which correspond to the four groups of graphs: (a) $H/H_a = 1$, (b) $H/H_a = 0.6$, (c) $H/H_a = 0.4$, and (d) $H/H_a = 0.2$. Represented in each group, as a function of the applied field angle ψ , are the angle $\tilde{\theta}(t)$ made by the last spin of the soft layer (top), the normalized energy $\tilde{\epsilon}$ (middle), and the normalized AMR \bar{R} (bottom) of the stable magnetic profile(s). Different line styles are used, which correspond to different local minima of the total energy ϵ [Eq. (6)] (see text for details).

図 4-8. $t/\lambda=6$ 、 $H/H_a=1, 0.6, 0.4, 0.2$ の場合について計算された磁化配列、エネルギー、AMR [4-4]

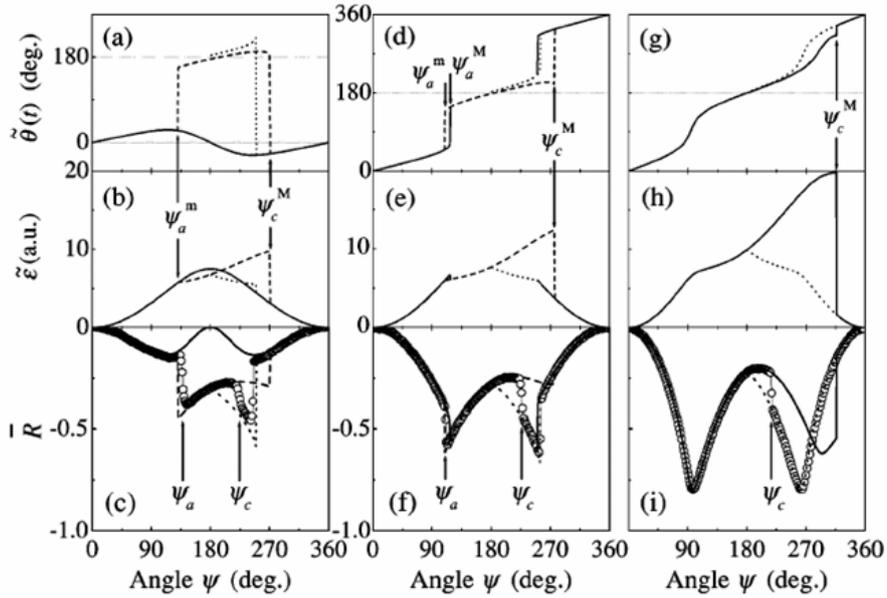


FIG. 9. (c, f, i) Comparison between $\bar{R}(\psi)$ curves deduced from the experiments performed at 50 K on a $\text{Tb}_{55}\text{Fe}_{45}$ (50 nm)/ $\text{Gd}_{40}\text{Fe}_{60}$ (100 nm) spring-magnet structure (open circles) and the results from the model of Sec. IV A (lines), assuming $t/\lambda = 4.5$ and $H_a = 240$ Oe, for three different field values: (c) $H=100$ Oe, (f) $H=150$ Oe, and (i) $H=300$ Oe, corresponding to regimes C, B, and A, respectively. Also represented are the corresponding theoretical angular variations of the angle $\tilde{\theta}(t)$ (a, d, g) and of the energy $\tilde{\epsilon}$ (b, e, h) associated with the stable magnetic profile(s) of the soft layer. As in Fig. 1, different line styles are used, which correspond to different local minima of the energy ϵ [Eq. (6)].

図 4-9. TbFe/GdFe 二層膜の AMR 曲線 [4-4]

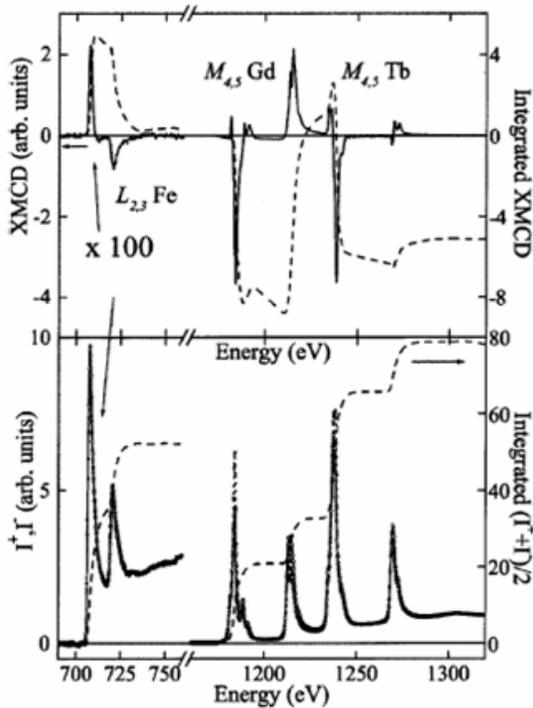


FIG. 2. (a) XMCD signals (solid lines) at the Fe $L_{2,3}$, Gd $M_{4,5}$ and Tb $M_{4,5}$ edges obtained at 100 K for both circular polarizations σ^+ and σ^- and integrated XMCD signal (dashed line) needed for the sum rules application (Ref. 32). (b) Absorption intensities I^+ (circle) and I^- (cross) at the Fe $L_{2,3}$, Gd $M_{4,5}$ and Tb $M_{4,5}$ and corresponding integrated $(I^+ + I^-)/2$ intensity needed for the sum rules application (Ref. 32).

図 4-10. GdFe/TbFe 二層膜の Fe-L、Gd-M、Tb-M 吸収端近傍 XMCD スペクトル測定 [4-7]

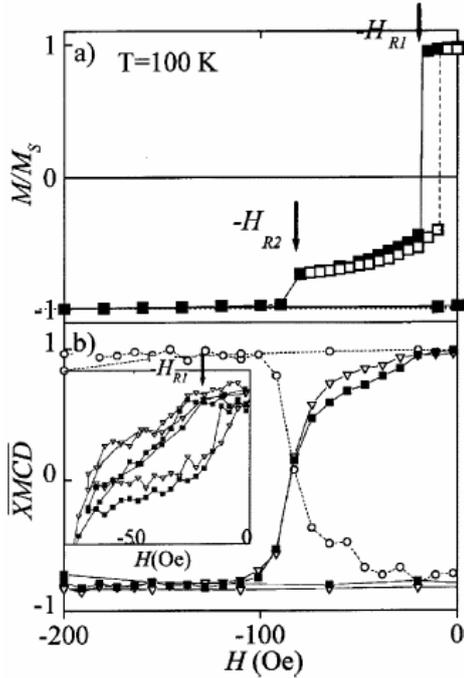


FIG. 3. Magnetic measurements performed at 100 K on Glass/Gd₄₀Fe₆₀(100 nm)/Tb₅₅Fe₄₅(3 nm)/Al(3 nm) after saturating the sample at 300 K under 1 kOe applied along the GdFe easy axis and then cooling the sample under $H_{fc} = 1$ kOe along the same direction. (a) Normalized SQUID magnetization (M/M_S) hysteresis loop. Solid square (■): major loop performed by sweeping the field from 1 kOe to -1 kOe and back to 1 kOe; Open square (□): minor loop obtained by sweeping the field from 1 kOe to -75 Oe to 1 kOe. (b) Normalized XMCD signals (\overline{XMCD}) at the Fe $L_{2,3}$ edges (open circle) and the Gd (solid square) and Tb (open triangle) $M_{4,5}$ edges collected as a function of the applied field. The applied field was swept from 1 kOe to -500 Oe back to 1 kOe. In inset, minor loop for a field swept from 1 kOe to -75 Oe back to 1 kOe.

図 4-11. GdFe/TbFe 二層膜の (a) SQUID によるマクロ磁化過程と (b) XMCD ヒステリシスの元素選択磁化過程 [4-7]

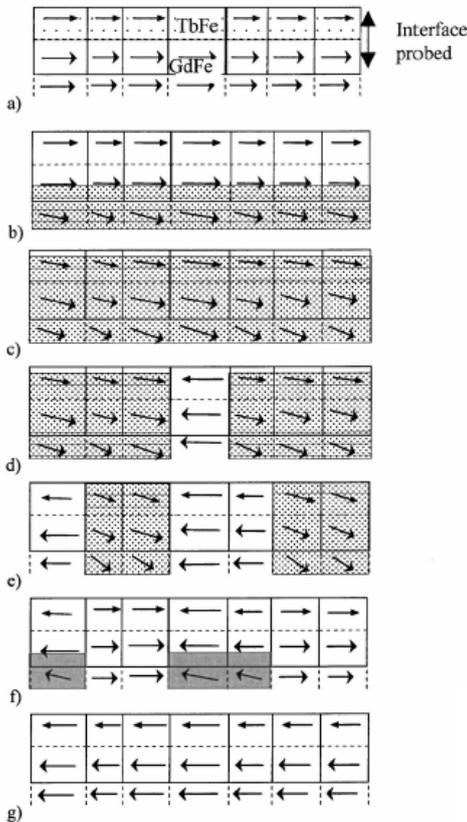


FIG. 7. Schematic magnetic configurations at the GdFe/TbFe interface. The position of the interface domain wall is colored in gray: (a) $H > -H_{R1}$: The sample is saturated along the cooling field direction (positive field direction). (b) $H = -H_{R1}$: a DW is present in the GdFe layer and is stopped at the GdFe/TbFe interface (all domains are in the DW state). (c) $H < -H_{R1}$: The DW is compressed and penetrates in the TbFe layer. (d) One domain switches from a compressed DW state to a saturated state (Sat⁻ state). (e) A few domains are in saturated state and the other are in a compressed DW state. (f) GdFe magnetization reversal switches all domains in (e) from one state to the other. (g) The sample is saturated in the negative field direction.

図 4-12. GdFe/TbFe 界面の磁化反転モデル [4-7]

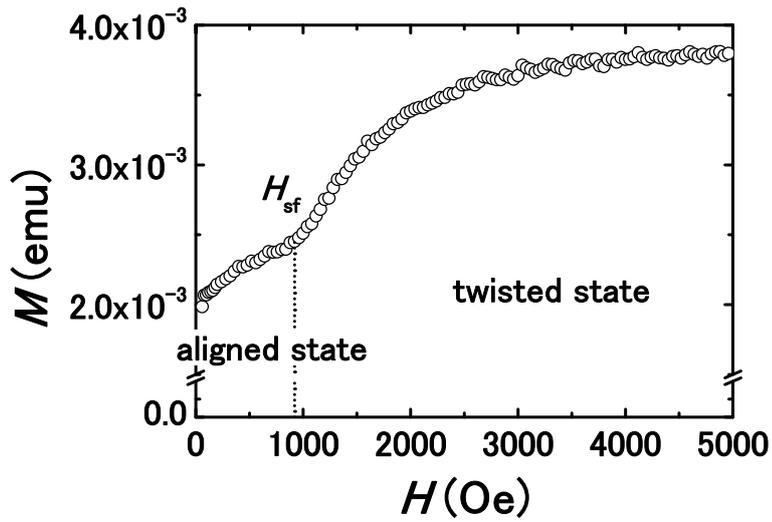


図 4-13. Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å] 三層膜の磁化過程

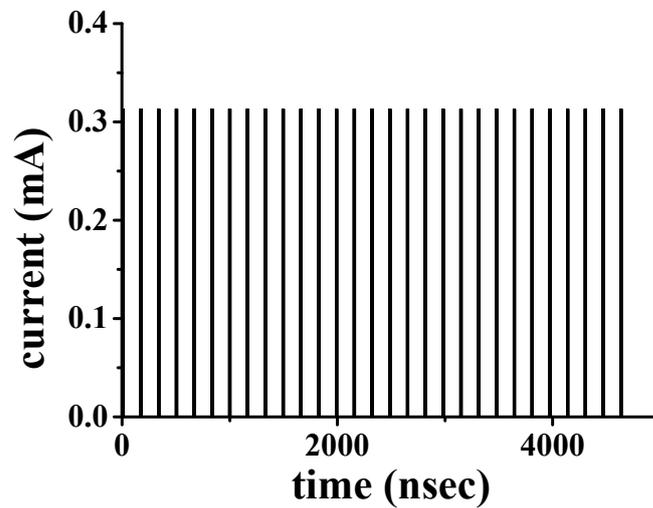


図 4-14. 11 bunch train×29 モード時間構造

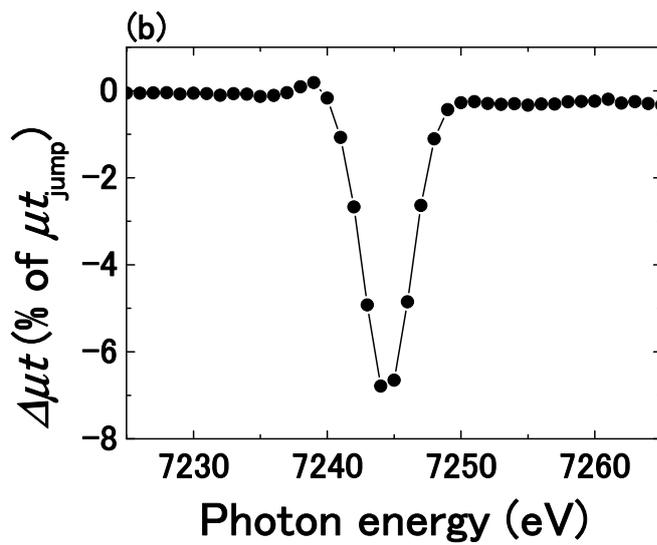
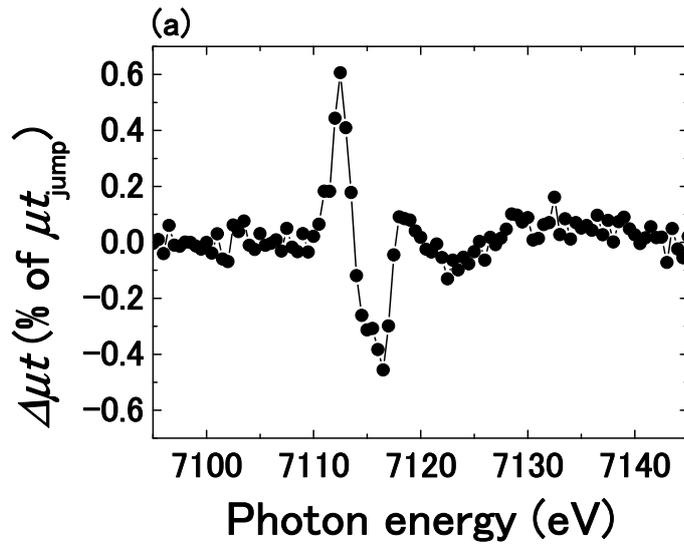


図 4-15. $\text{Fe}_{60}\text{Gd}_{40}$ 単層膜の (a) Fe-K (7112 eV)、(b) Gd- L_3 端 (7243 eV) 近傍の磁気円二色性スペクトル

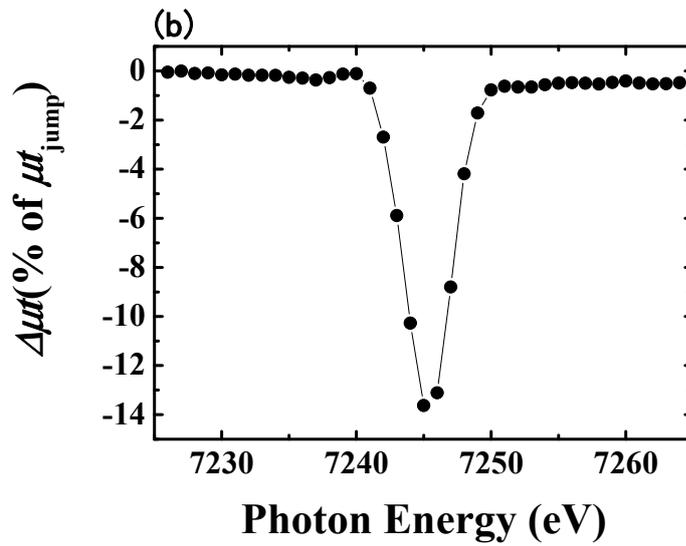
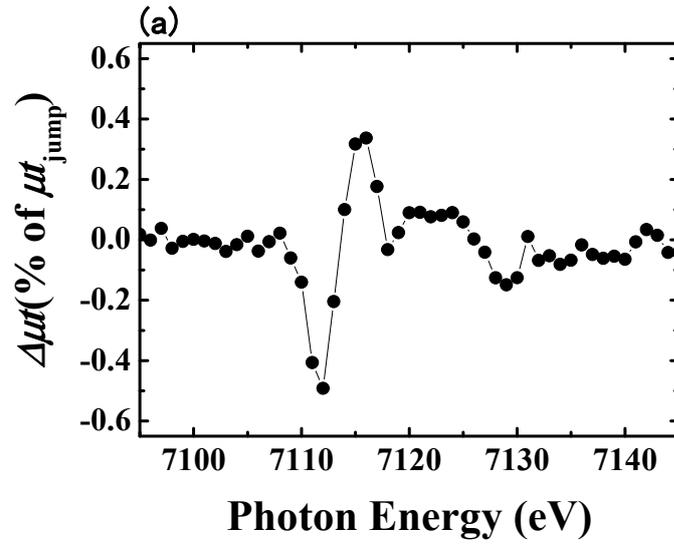


図 4-16. 磁気円二色性スペクトル (a) Fe/Au 多層膜の Fe-K 端近傍のスペクトル形状、(b) Gd/Cu 多層膜の 20 K での Gd- L_3 端近傍のスペクトル形状

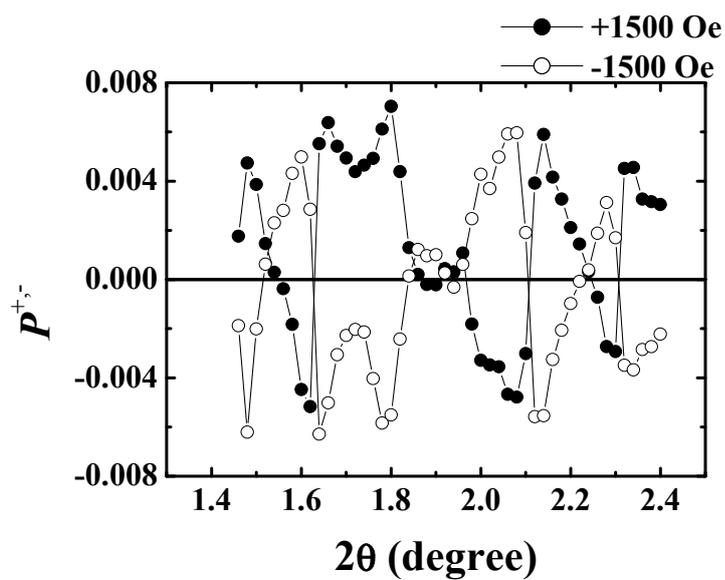
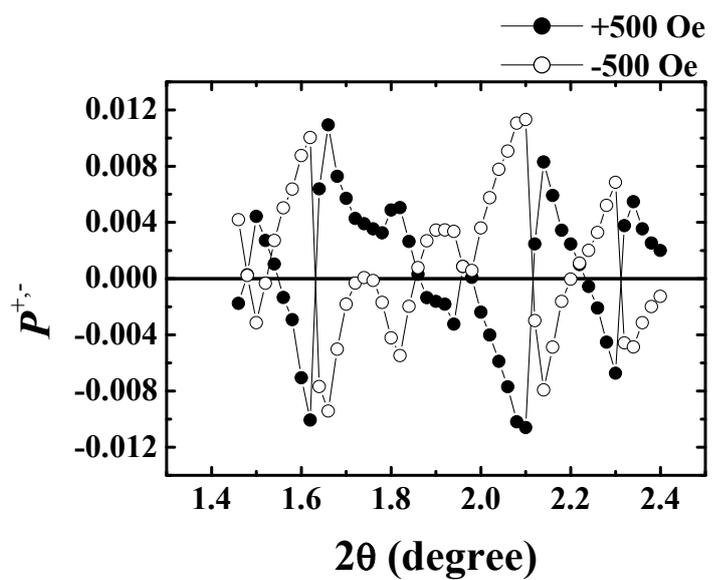


図 4-17. (a) ± 500 Oe、(b) ± 1500 Oe での Gd- L_3 端 (7243 eV) へリシティー差強度プロファイルの測定結果

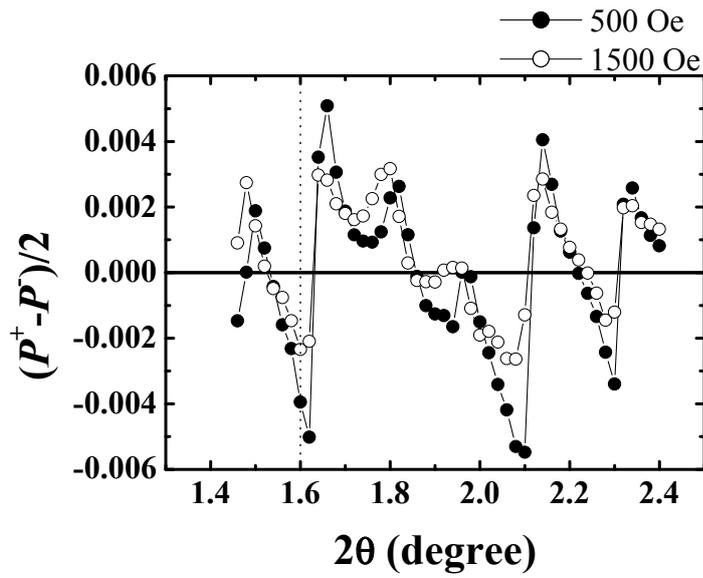


図 4-18. Gd- L_3 端 (7243 eV) 磁気反射率プロファイル

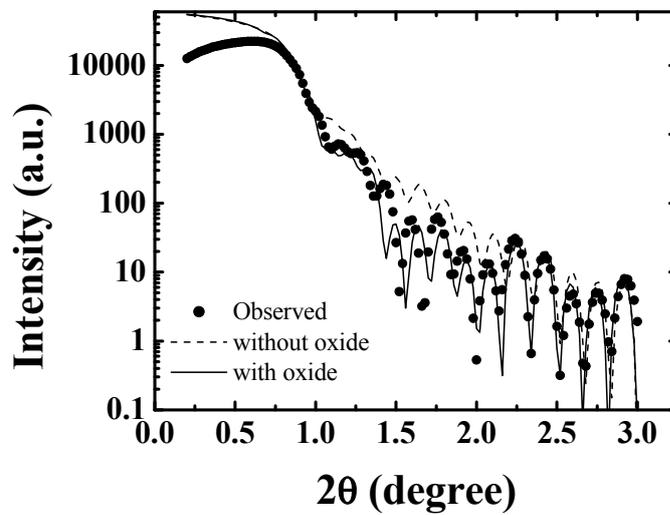


図 4-19. Gd- L_3 端 (7243 eV) Fe/FeGd/Fe 三層膜電荷反射率測定 (黒丸: 測定値、実線: 表面酸化層を仮定、破線: 酸化層仮定せず)

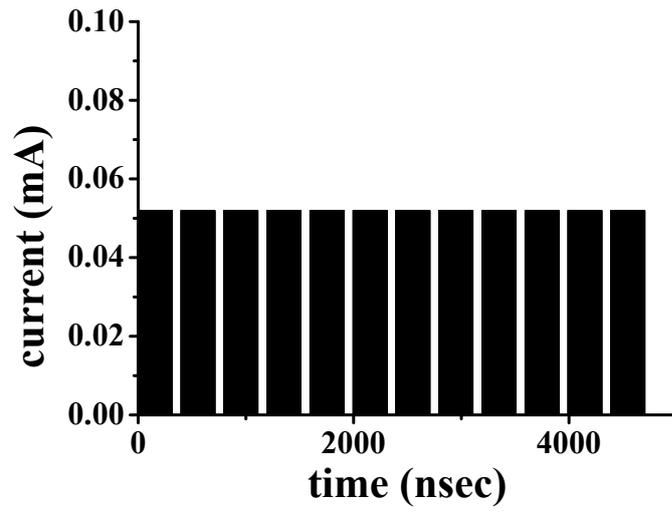


図 4-20. multi-bunch モード時間構造

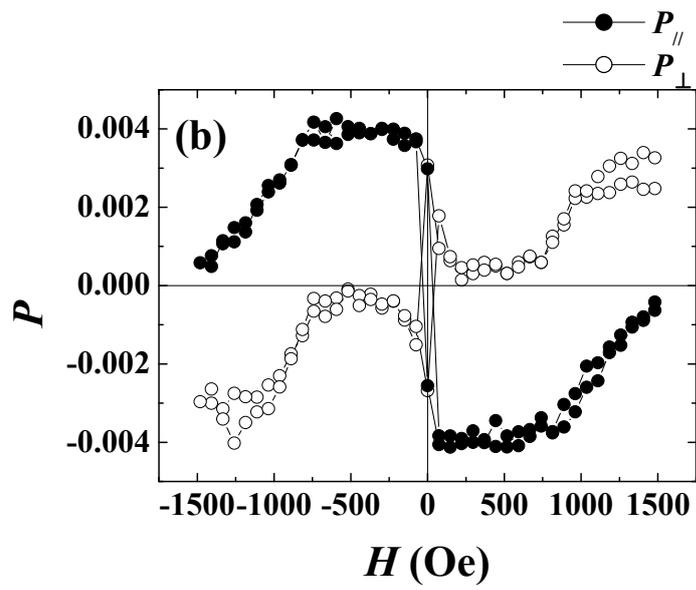
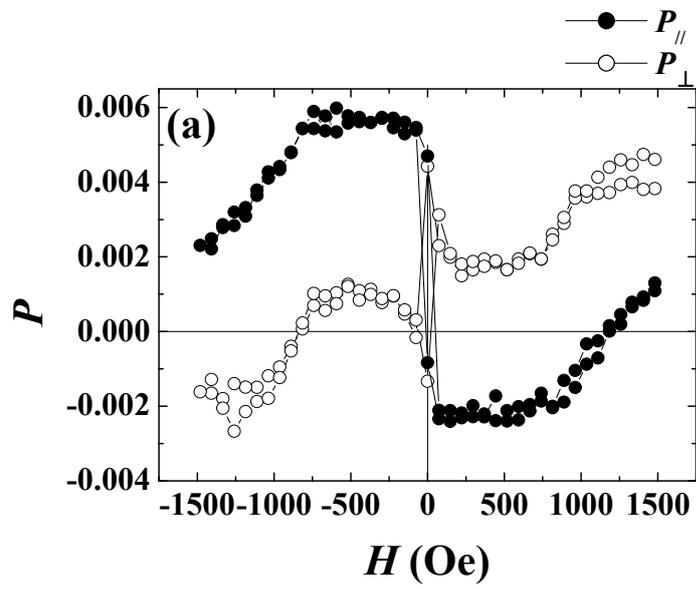


図 4-21. 磁気反射率ヒステリシス測定 (A 配置)
 (a) 補正前、(b)補正後

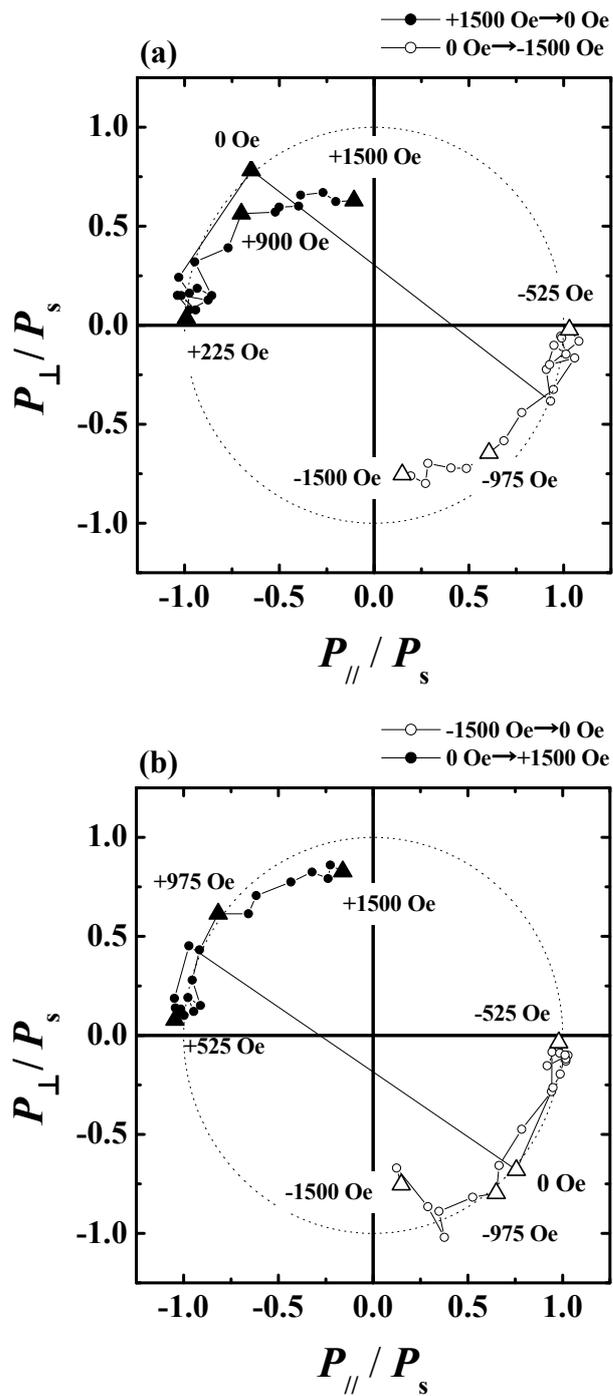


図 4-22. Gd 磁化のベクトル表示

(a) $+1500 \text{ Oe} \rightarrow 0 \text{ Oe} \rightarrow -1500 \text{ Oe}$ 、(b) $-1500 \text{ Oe} \rightarrow 0 \text{ Oe} \rightarrow +1500 \text{ Oe}$

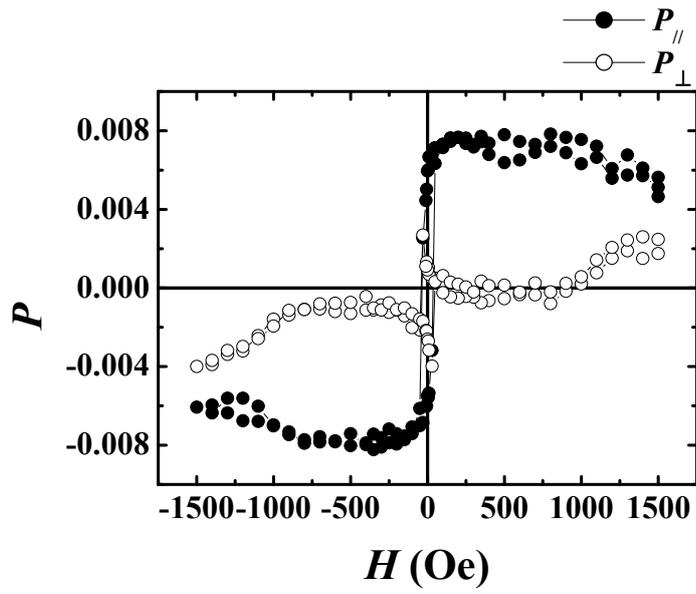


図 4-23. 磁気反射率ヒステリシス測定 (B 配置)

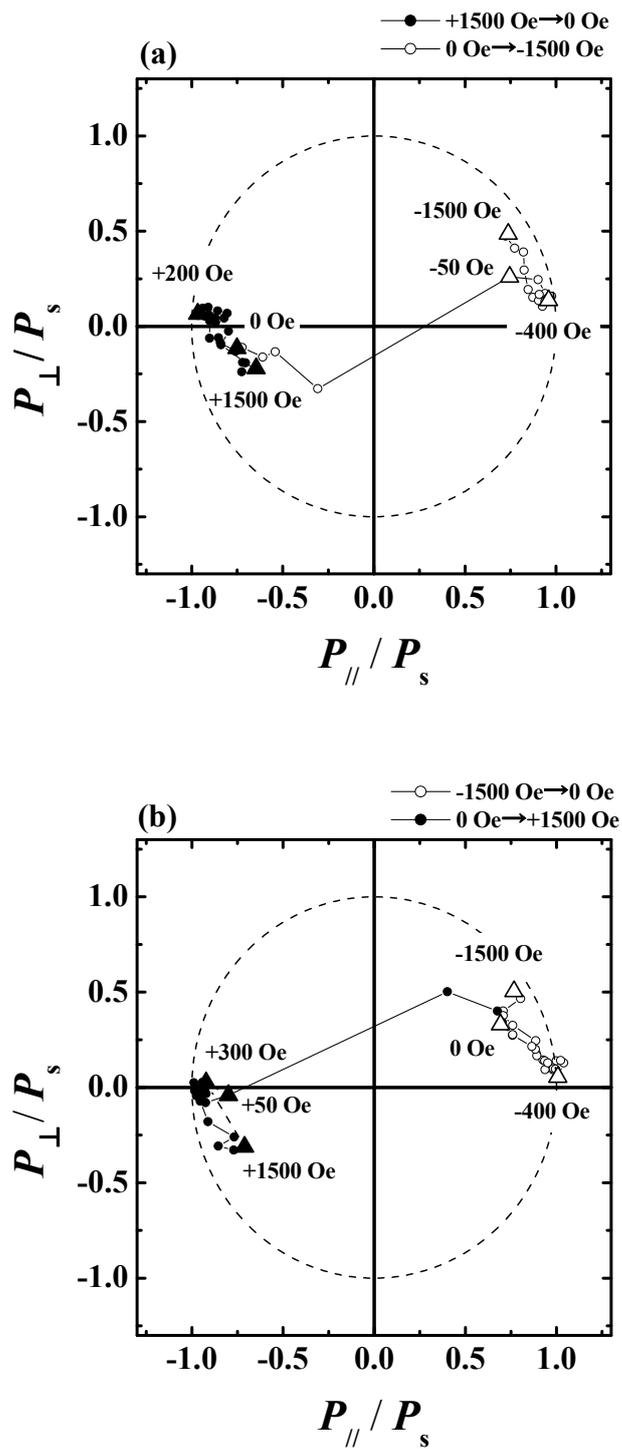


図 4-24. Gd 磁化のベクトル表示 (B 配置)

(a) +1500 Oe \rightarrow 0 Oe \rightarrow -1500 Oe、(b) -1500 Oe \rightarrow 0 Oe \rightarrow +1500 Oe

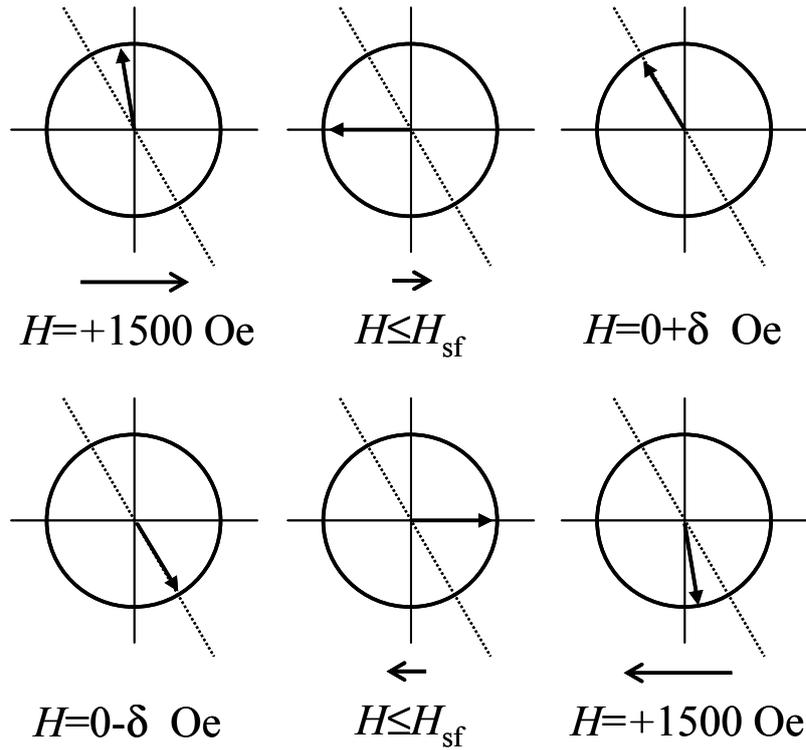


図 4-25. 磁化容易軸と Gd 磁化ベクトルの挙動 (測定 A)

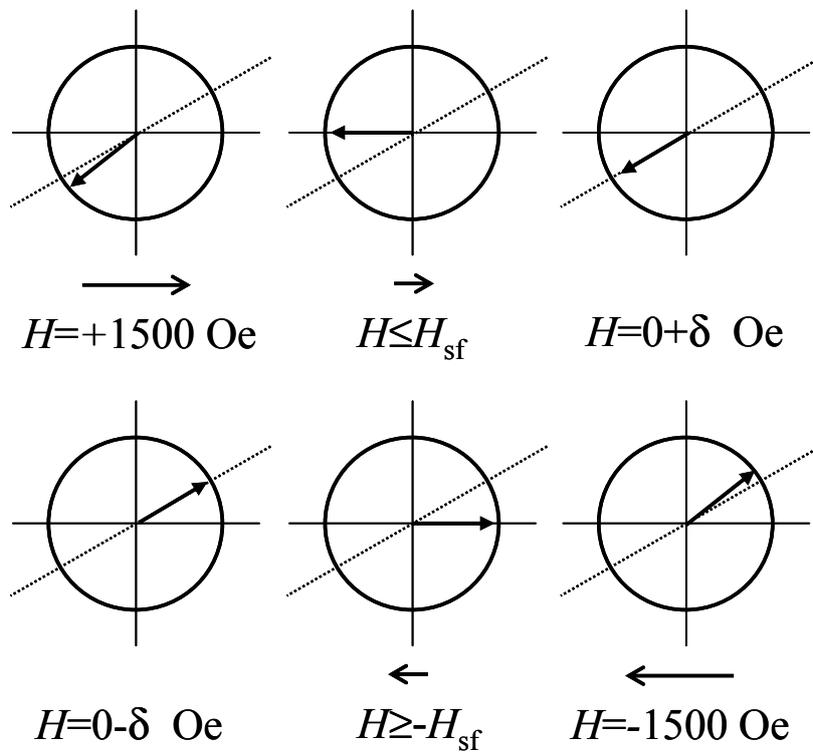


図 4-26. 磁化容易軸と Gd 磁化ベクトルの挙動 (測定 B)

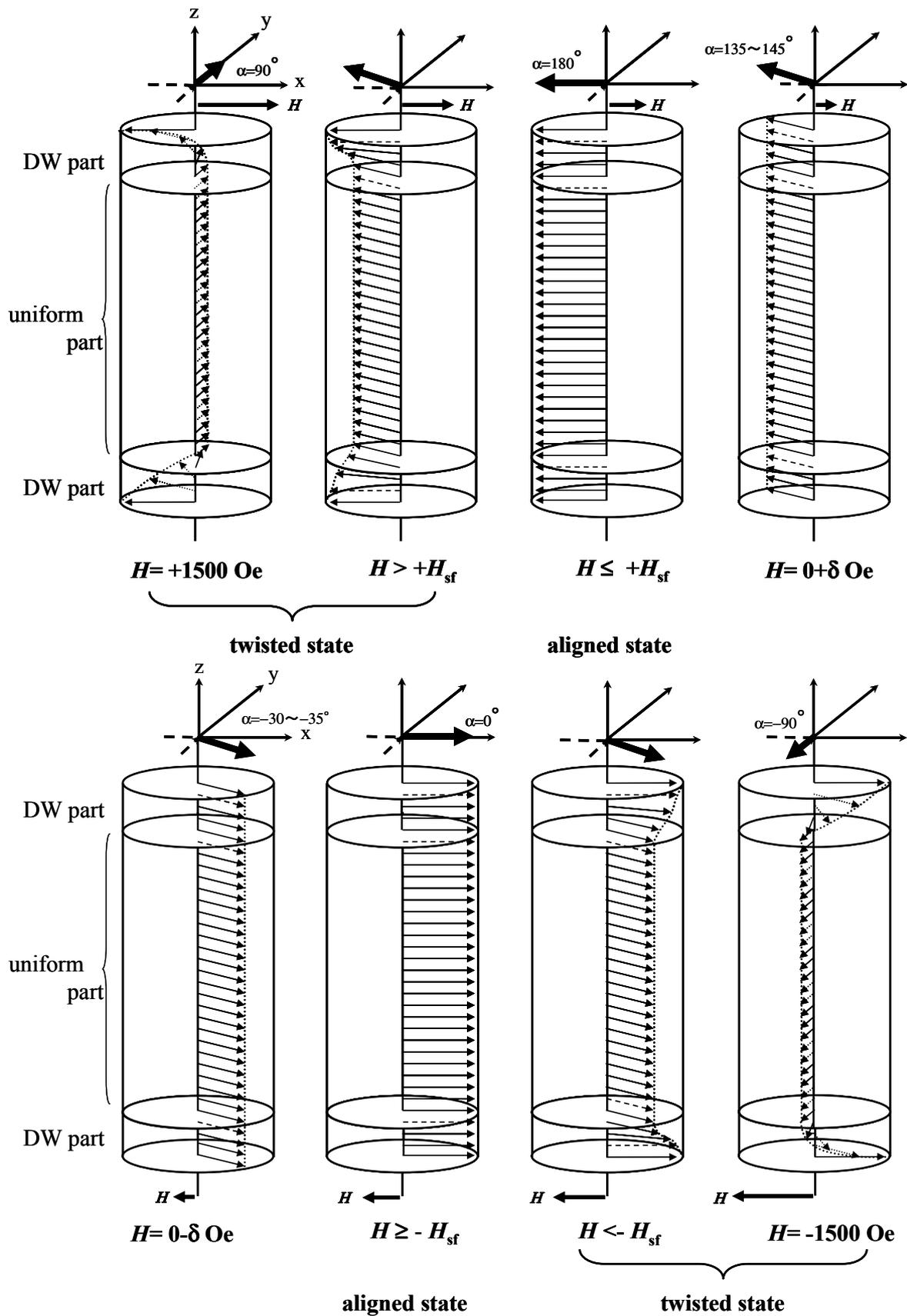


図 4-27. Fe/FeGd/Fe 三層膜における Gd 磁化回転モデル

表 4-1. Fe/FeGd/Fe 三層膜の膜厚、ラフネス、密度（酸化膜なし）

atoms	t (Å)	σ_{rms} (Å)	ρ_0 ($\times 10^{22}/\text{cm}^3$)
Fe	150.02	9.0	8.49
FeGd	305.74	9.0	6.30
Fe	120.22	9.0	8.49
Si	-	2.0	4.99

表 4-2. Fe/FeGd/Fe 三層膜の膜厚、ラフネス、密度（酸化膜を仮定）

atoms	t (Å)	σ_{rms} (Å)	ρ_0 ($\times 10^{22}/\text{cm}^3$)
Fe ₂ O ₃	33.12	9.6	9.88
Fe	117.60	8.5	8.49
FeGd	303.24	8.5	6.30
Fe	119.84	8.5	8.49
Si	-	2.0	4.99

5 章 Co/FeGd/Co 三層膜における元素選択的磁化過程

5-1 測定試料

測定試料は Fe/FeGd/Fe 三層膜の場合と同様に、 ± 1500 Oe の範囲内で aligned から twisted の変化が生じる試料を用いた。放射光実験に用いた試料の構造は以下の通りである。

Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å] / Si (111)

Co[140 Å] / {Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å]} $\times 6$ / polyimide

Si 基板試料は RXMR 実験に、ポリイミド試料は XMCD 実験用である。三層膜の磁化過程について図 5-1 に示す。 H_{sf} の値は異なるが、定性的には Fe/FeGd/Fe 試料と同じ磁化過程を示している。

5-2 磁気円二色性スペクトルの測定条件と結果

Co/FeGd/Co 三層膜(Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å] / polyimide) の Co-K (7720 eV)、 Fe-K (7112 eV)、 Gd-L₃ (7243 eV) 端近傍で XMCD スペクトル測定をおこなった。各エネルギー領域に対して 200、1500、5000 Oe の磁場条件でスペクトルを測定した。全ての測定で厚さ 0.73 mm のダイヤモンド移相子を 220 Laue 配置で用いた。蓄積リングモードはリングの 1/12 に bunch train があり、残りの 11/12 に 10 個の single bunch が等間隔に存在する 1/12 filling+10 bunch (通称 D モード) であった。train 通過幅 399.15 nsec、single bunch 間隔も同様に 399.15 nsec である。train 部分の蓄積電流は 0.313 mA/bunch、single bunch 部では 1.5 mA/bunch で全蓄積リング電流は 100 mA であった。Top-up 入射は 1 分間隔である。図 5-2 に時間構造を示す。

図 5-3(a)に Co の XMCD スペクトルを示す。試料を 6 枚重ね、7680 eV から 7760 eV を 1 eV 刻みで測定した。印加磁場 200、1500、5000 Oe で測定した Co の磁気円二色性スペクトルは全く同じプロファイルになっている。低エネルギー側で正の大きなピークを持つことから、Co 磁気モーメントは磁場に平行方向に配列していることが分かる。図 5-1 のマクロな磁化曲線において 200 Oe は aligned、1500、5000 Oe は twisted state

であることが示されたが、各磁場での Co のスペクトルに変化がない。つまり Co は常に磁場と平行な状態を保ち、磁場の強さによって磁場方向から傾くことはない。

図 5-3 (b) に Gd の XMCD スペクトルを示す。試料を 4 枚重ね、7190 eV から 7290 eV を 1 eV 刻みで測定した。200 Oe で測定されたプロファイルは正のシグナルを示す。1500 Oe では小さな正のシグナルが確認でき、5000 Oe では符号が負に反転する。Gd モーメントは磁場に対して反平行配列から平行配列に変化することを示す。もし面内の Gd モーメントが磁場に対して面内で完全に直交していれば、スペクトルのシグナルは現れない。1500 Oe でのスペクトルから Gd モーメントはある程度磁場に対して傾いているが、磁場方向に向いているモーメントもあることを意味している。200 Oe と 5000 Oe のプロファイルの絶対値を比較すると 200 Oe のピーク値の方が大きい。磁場に colinear な Gd モーメントの量がシグナルの大きさを決めることから、Gd を飽和（磁場方向に向ける）させるには 5000 Oe では不十分であることが分かる。ピークの比率から 200 Oe での磁場と colinear な磁気モーメントの量の半分程度が 5000 Oe で磁場方向に向けられている。マクロな磁化測定において、10000 Oe の外部磁場を印加したにもかかわらず、飽和に至らなかったことから Co と Gd の反強磁性結合はかなり強いことが分かる。

図 5-3 (c) に Fe の XMCD スペクトルを示す。試料を 6 枚重ね、7062 eV から 7162 eV を 0.5 eV 刻みで測定した。200 Oe では低エネルギー側に正、高エネルギー側に負、5000 Oe では符号が入れ替わる。これは磁場に平行配列から反平行配列に変化することを示す。FeGd 単層膜と同様に三層膜中の FeGd 合金もフェリ磁性体である。低エネルギー側のピークの絶対値の大きさから、Gd と同様に 5000 Oe では飽和していないことが分かる。1500 Oe ではシグナルの大きさが小さいため符号が確認できなかったが、Gd と反平行結合していることを考慮すると、わずかに反平行方向の成分を持っていると推察される。

5-3 磁気反射率プロファイルの測定条件と結果

Co/FeGd/Co 三層膜 (Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å] / Si (111)) の Co-K (7720 eV)、Gd-L₃ (7243 eV)、Fe-K (7112 eV) で RXMR 測定をおこなった。移相子は XMCD スペクトル測定の設定と同じである。

Co/FeGd/Co 三層膜の Co は aligned、twisted の違いによる配列方向の変化は生じないということが XMCD の結果から示されている。よって、Co 膜の深さ方向の磁気構造が変わる可能性は低い。また Fe/FeGd/Fe 三層膜の RXMR プロファイル測定の結果から Gd の深さ方向の構造は大きく変化しないことが示唆されたので、Co/FeGd/Co 三層膜においても同様であると予想し、aligned、twisted の磁気反射率プロファイルの違いの比較は行わなかった。磁気反射率ヒステリシス測定を行う角度を決定するために、twisted state よりも磁気散乱強度が大きく出るであろう aligned state (200 Oe) の測定を行った。蓄積リングモードは磁気円二色性実験の時と異なり、160 bunch train が全周において 12 個ある multi-bunch (160 bunch train × 12) モードでおこなった。train 通過幅 315 nsec、train 間隔 85 nsec である。蓄積電流 0.313 mA、全蓄積リング電流は 100 mA であった。図 5-4 に時間構造を示す。

測定条件を表 5-1 に示す (測定方法の詳細は 4 章を参照)。測定結果を図 5-5、5-6 に示す。図 5-5 は +200、-200 Oe でのヘリシティ差強度プロファイルである。ただし各点は P^{+-} ではなくそれぞれの電荷散乱強度で規格化しない値 diff^{+-} をプロットしている (式 2-18 参照)。これは電荷散乱に対応する和強度 $\text{sum} : (A^+/I^+) + (A^-/I^-)$ 、と磁気散乱に対応する差強度 $\text{diff} : (A^+/I^+) - (A^-/I^-)$ の振動周期のずれが原因で、電荷強度で規格化した P^{+-} では明瞭な振動の様子が確認できなかったためである。また図 5-6 は 1500、500 Oe それぞれの磁場での磁場反転の差強度から得られる RXMR プロファイルである。このプロファイルも同様の理由で $(\text{diff}^+ - \text{diff}^-)/2$ をプロットした。

図 5-5 に示す Fe、Gd の差強度プロファイルは磁場反転に対応してほぼ反転しているが、 $\text{diff}=0$ の軸に対して完全には対称にはなっていない。これは 4-5 節で述べた磁性に起因しないアーティフィシアルなバックグラウンドの影響である。一方 Co のプロファイルは +200、-200 Oe ともよく似ており反転していない。Hayasaki らは Co/Cu 多層膜の Co-K 端の共鳴磁気回折実験で磁気回折強度が磁場に対し反転しない事例を報告しており、その原因は APD 検出器、フォトンカウンタから成る検出系の不感時間 (2nsec) に対して光パルス幅が小さいことに由来する数え落としによる影響であると報告している [5-1]。図 5-5 に示す Co-K 端差強度プロファイル測定はおおよそ $2\sim 3 \times 10^6 \text{cps}$ で計数されているのに対して Fe-K 端の磁気散乱プロファイルはおおよそ $1 \times 10^5 \text{cps}$ のオーダーで測定している。今回のバンチモードにおいて、3d 強磁性金属の磁気散乱のように小さなシグナルを検出する場合は APD のカウントレートを 10^5cps のオーダ

ーに保つ必要があったと考えられる。

Gd、Fe の差強度プロファイルにおいて、磁場反転にともなってシグナルが大きく変化し、各測定エネルギーで q_z がほぼ等しくなるようにヒステリシス測定を行う角度を決定した。表 5-2 に 2θ 、 q_z 、そしてその角度での RXMR 偏極率 $(P^+ - P^-) / 2$ を示す。

5-4 磁気反射率ヒステリシスの測定条件と結果

RXMR の磁場依存性を測定することで Co/FeGd/Co 三層膜の Co、Gd、Fe の各元素選択的な磁気ヒステリシスを測定した。エネルギー、角度を表 5-1 に示す。+1500 Oe \rightarrow 0 Oe \rightarrow -1500 Oe \rightarrow 0 Oe \rightarrow +1500 Oe の順に磁場を掃引した。1500~400 Oe は 100 Oe 刻み、400~50 Oe は 50 Oe、50~10 Oe は 20 Oe 刻み、10~0 Oe は 5 Oe 刻みで散乱強度を測定した。磁場の設定は計数と連動して自動化され、1 点あたり各ヘリシティ 10 秒の計数を行った。カウントレートはおおよそ 3×10^6 cps である。平行配置の測定後、4 章と同じ手順で垂直配置の測定を行った。RXMR ヒステリシス測定の結果を図 5-7 に示す。なおヒステリシスは平均値が零になるように補正されている。黒丸、白丸はそれぞれ平行、垂直配置で測定した偏極率 $P_{//}$ 、 P である。

図 5-7 (a) の Co のヒステリシスについて説明する。ヒステリシスは常に $|P_{//}| \approx 0.001$ 、 $P \approx 0$ である。磁場を印加すると直ちに飽和する。これは XMCD の結果と一致している。また P が 0 なので磁場反転の際、試料面内で扱れた状態にならずに直ちに磁化反転することがわかる。Co 層の保磁力は小さい。XMCD、RXMR の強度が磁場によって変化しないので深さ方向にも一様であることが予想される。

続いて図 5-7 (b) の Gd のヒステリシスの $P_{//}$ の挙動について磁場を印加した順番に説明する。+1500 Oe において $P_{//}$ はある値 (約 -0.002) を持ち、そこから磁場を弱めるにつれて $|P_{//}|$ は大きくなる。400~500 Oe 付近で $P_{//}$ は -0.008 に到達し、その磁場から 0 Oe までは一定値である。400~500 Oe での偏極点は図 5-1 に示すマクロな磁化曲線の H_{sf} に対応する。0 Oe から -1500 Oe のマイナス磁場領域についてもプラス磁場領域の挙動と同じである。この Co/FeGd/Co 三層膜における Gd の $P_{//}$ のヒステリシスの挙動は 4 章に示した Fe/FeGd/Fe 三層膜中の Gd と全く同じである。しかし P については全く異なっており、Co/FeGd/Co 三層膜では常に 0 である。

Fe/FeGd/Fe 三層膜の Gd モーメントのように一方向に揃えられるのであれば、 $P_{\perp} = 0$ は成立しない。 $P_{\perp} = 0$ の状態を保ちながら P_{\parallel} を増減できる磁化過程モデルが必要である。

続いて図 5-7(c) の Fe のヒステリシスについて説明する。磁気偏極率の大きさは表 5-2 に示すように Co と変わらない(むしろ大きい)。しかし、シグナルの S/N が小さく、ノイジーなヒステリシスになっている。この理由は不明である。 P_{\parallel} は強磁場では 0 に近づき、低磁場ではある値をもつ。 H_{sf} 付近で偏極がわずかに確認できる。三層膜の磁気円二色性の結果を合わせて考えると磁場を印加すると揃えることが予想される。しかし、FeGd 単層膜の磁気円二色性の結果から、FeGd はフェリ磁性体であることが明らかである。よって、Fe モーメントは $P_{\perp} = 0$ の状態を保ちながら Gd と逆の挙動を示すことが予想される。

5-5 Co/FeGd/Co 三層膜における磁化回転モデル

ここで Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Co[140 Å] 三層膜の各元素の磁化プロセス、磁気構造について実験結果から得られたことをまとめる。

Co について

- A. Co 磁化は磁場に対して常に平行で、揃えることはない。
- B. 保磁力が小さく、磁場反転に対して磁化が直ちに反転する。
- C. 深さ方向に一様な磁気構造である可能性が大きい。

Gd について

- A. Gd 磁化はスピントロップ磁場以下 ($|H_{sf}| = 400 \sim 500$ Oe) で磁場に反平行方向、以上で磁場方向に成分をもつ。
- B. $P_{\perp} = 0$ の状態を保ちながらスピントロップ磁場以上で P_{\parallel} が零に近づく

ことから単一のベクトルでは挙動を表せない。

Fe について

- A. Gd と常に反平行配列で、スピントロップ磁場も確認されたことから Gd と反対の動きをする可能性が高い。Fe も単一のベクトルでは挙動を表せない。

以上を踏まえた Co/FeGd/Co 三層膜における各元素の磁化回転モデルを図 5-8 に示す。図中 xy 面は試料平面を表し、プラス磁場方向は x 軸の正方向と同じである。z 方向磁気構造については aligned、twisted の状態を比較した磁気反射率測定を行っていないので面内の動きについてのみ示す。円の大きさは各元素の磁化の大きさを表しており、 $Fe < Gd < Co$ である。Co は常に磁場方向を向き、磁化の大きさが変化しないモデルになっている。Gd は 5000 Oe では磁場に平行、1500 Oe、 $|H_{sf}|$ 以下では反平行に平均磁化方向があり、なおかつ磁場に直交する成分をもたないように二つの磁化成分（図中、黒い矢印）が互いに逆方向に回転するモデルになっている。二つの成分の合成ベクトル（図中、ねずみ色矢印）が平均磁化を表している。便宜的に矢印を用いて磁化を示しているが、実際は面内で複数のドメインを形成して磁場に直交する成分を打ち消すようになっていると考えられる。z 方向（紙面に垂直）に磁化が成分を持つように回転することで、面内成分を持たない回転は可能であるが、面直（z 方向）に磁場を印加した VSM による磁化測定から z 方向の磁化成分を持つ回転の可能性はほとんど無いことが分かっている。Fe は Gd と xy 座標の原点对称となるモデルで示されている。

5 章 参考文献

[5-1] 早崎有一：アバランシェ・フォトダイオード検出器を用いた共鳴磁気散乱測定法の開発と薄膜磁性研究への応用，奈良先端科学技術大学院大学博士論文（2006）。

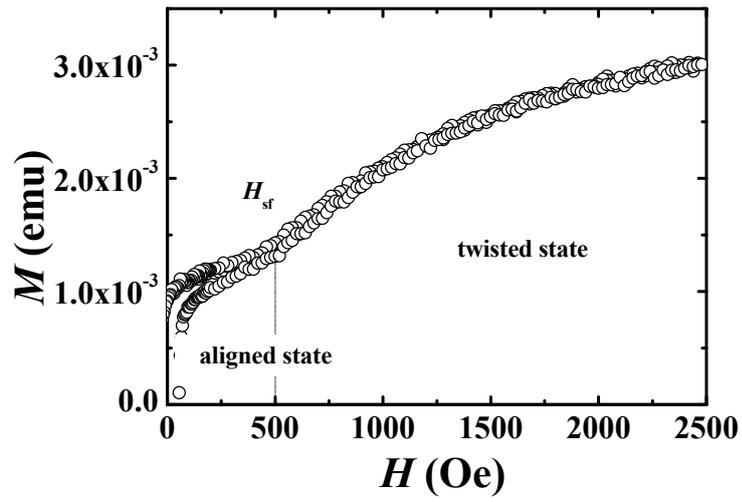


図 5-1. Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å] 三層膜の磁化過程

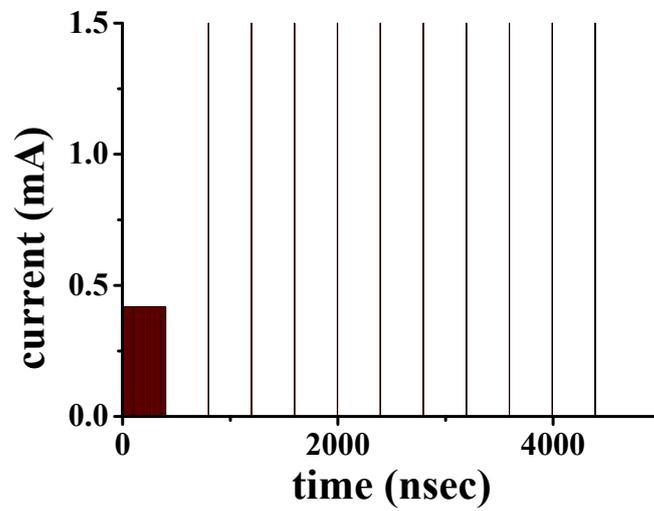
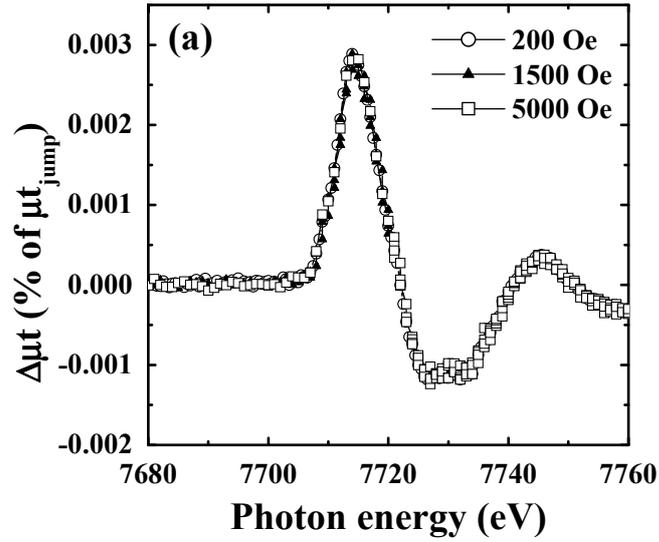
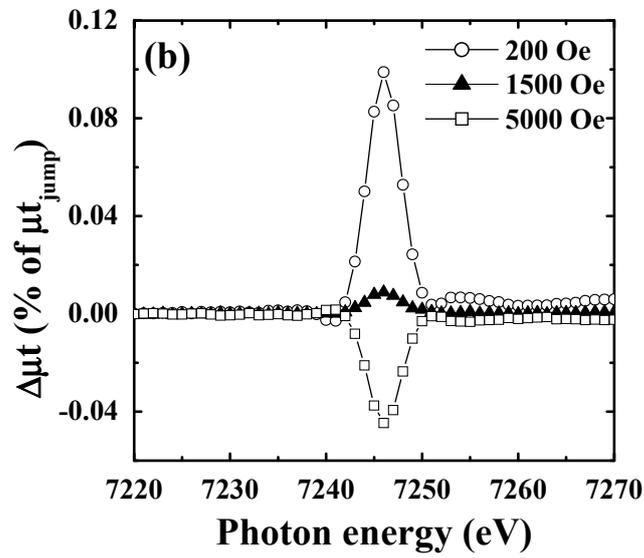


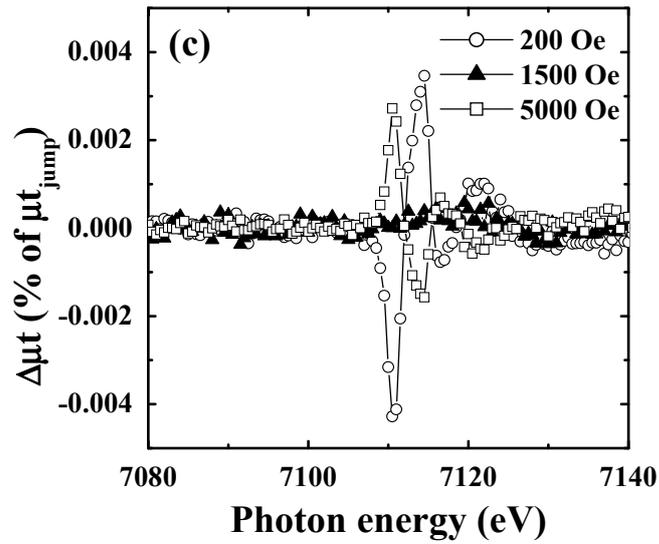
図 5-2. 1/12 filling+10 bunch モード時間構造



Co-*K*



Gd-*L*₃



Fe-*K*

図 5-3. Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å] 三層膜の (a) Co-*K* (7720 eV)、(b) Gd-*L*₃ (7112 eV)、(c) Fe-*K* (7243 eV) 端近傍磁気円二色性スペクトル

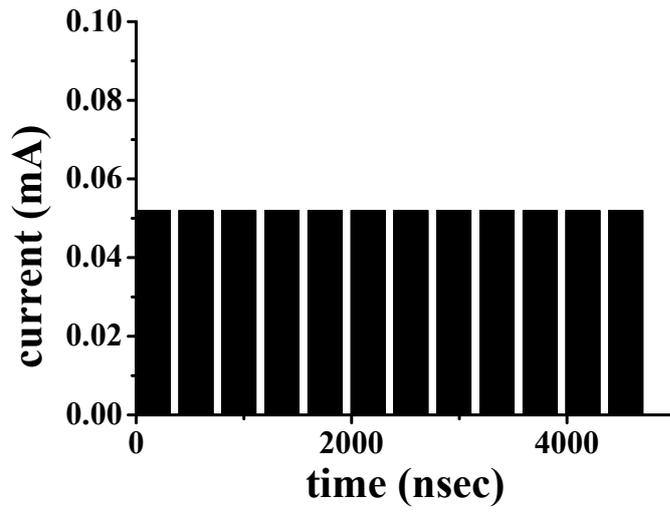


図 5-4. multi-bunch モード時間構造

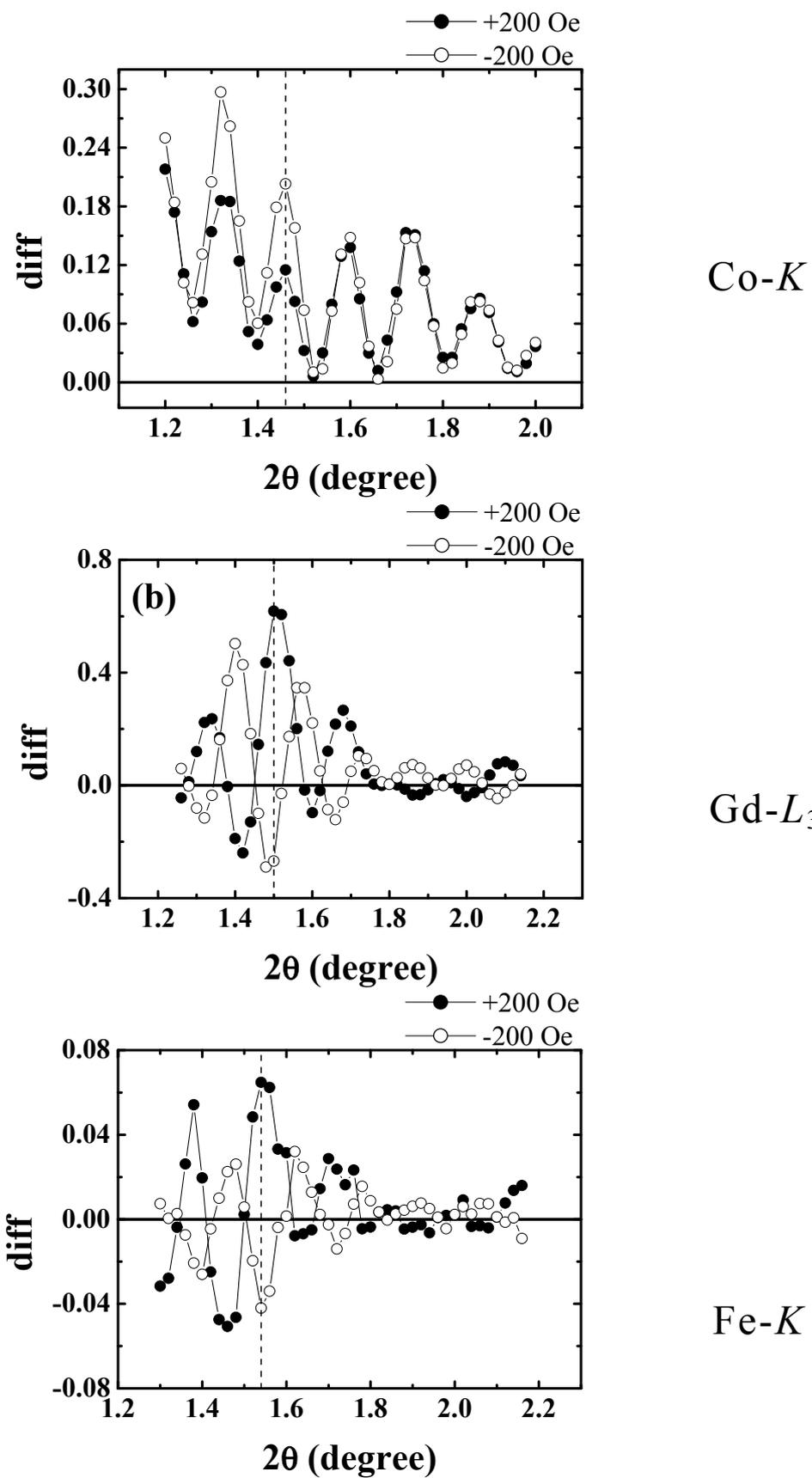
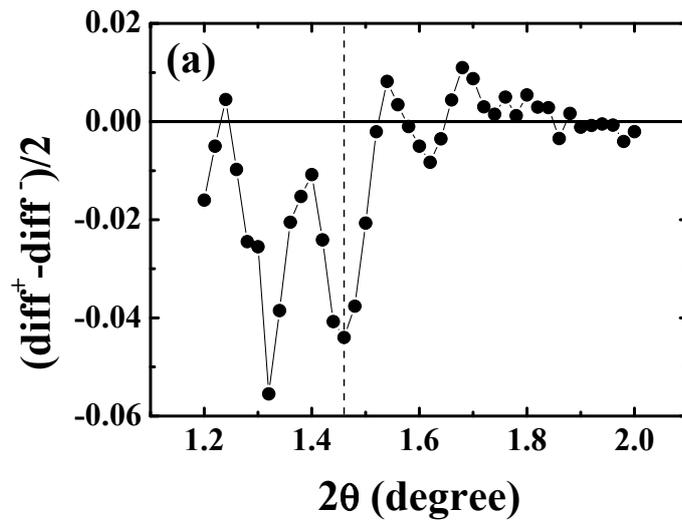
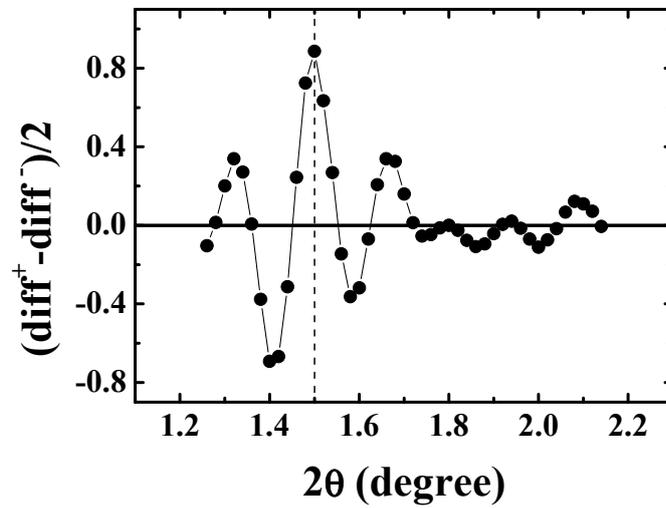


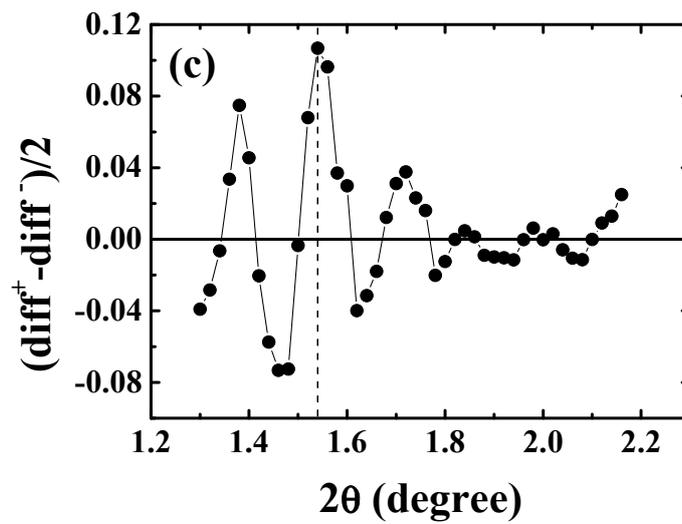
図 5-5. ± 200 Oe を印加した時の (a) Co-K (7720 eV)、(b) Gd- L_3 (7243 eV)、(c) Fe-K (7112 eV) 端でのヘリシティ-差強度プロファイル



Co-K



Gd- L_3



Fe-K

図 5-6. 磁気反射率プロファイル (a)Co-K(7720 eV)、(b)Gd- L_3 (7243 eV)、(c)Fe-K(7112 eV) 端

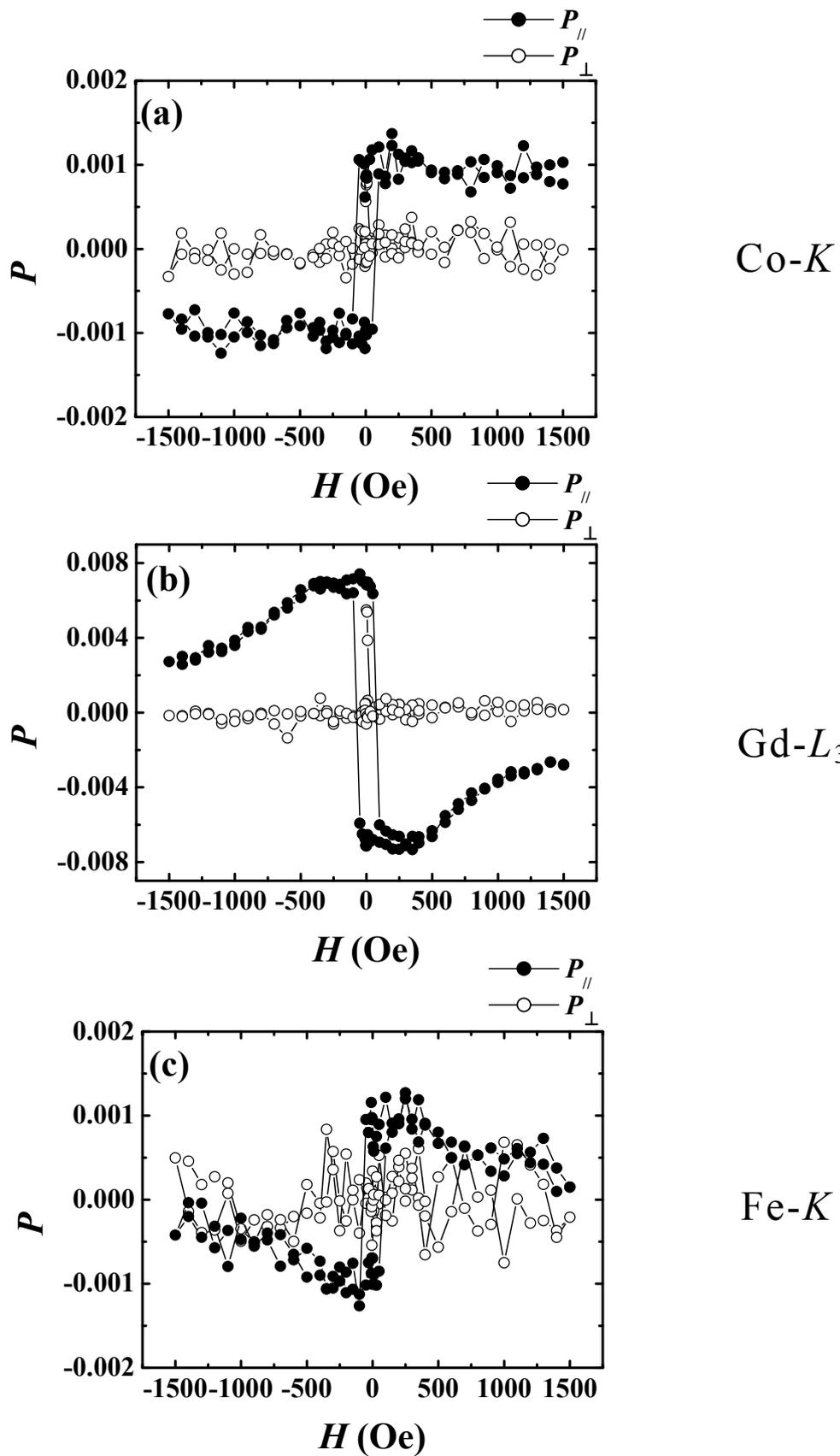


図 5-7. 磁気反射率ヒステリシス測定 (a) Co-K (7720 eV)、(b) Gd- L_3 (7243 eV)、(c) Fe-K (7112 eV) 端

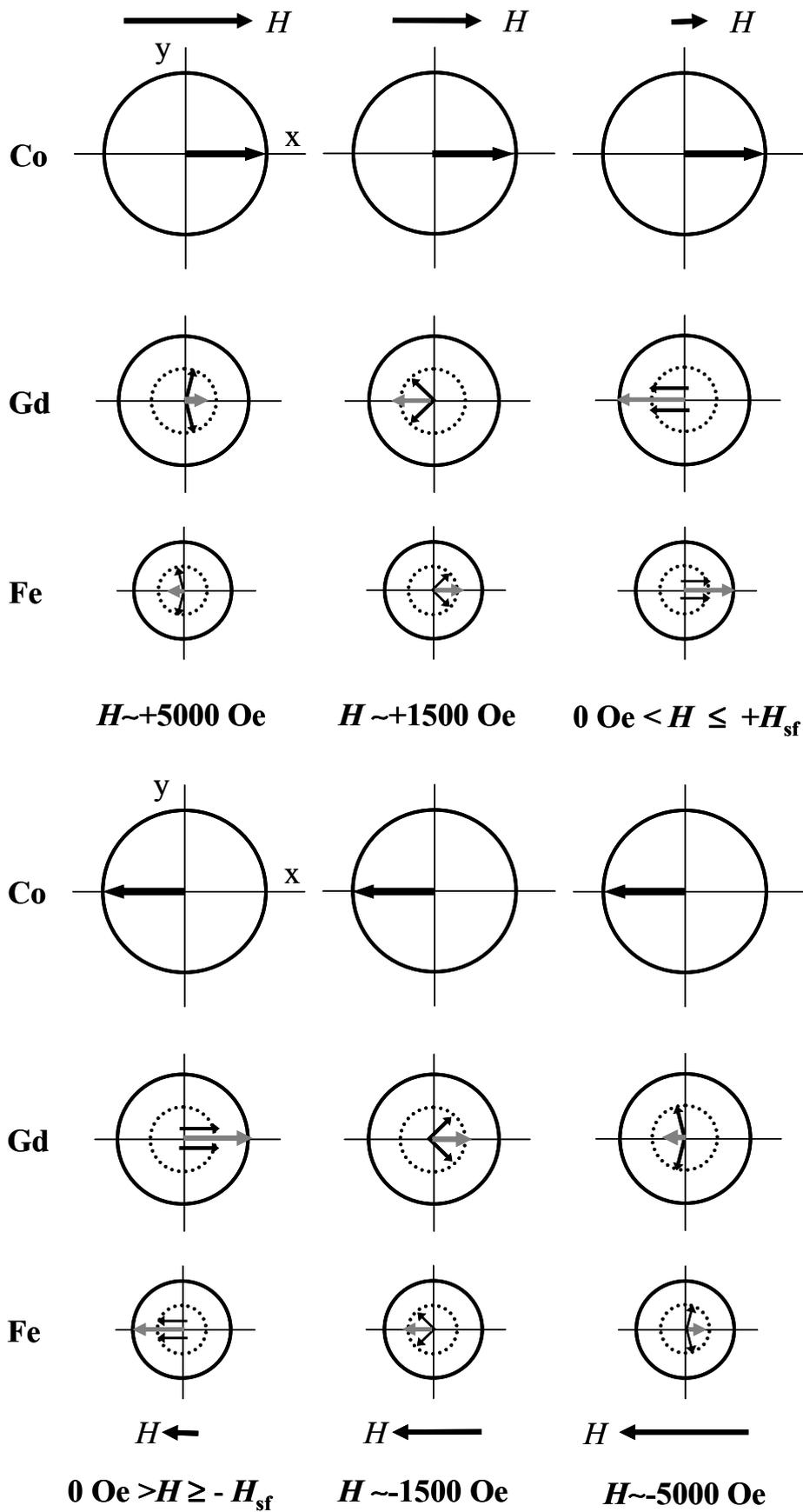


図 5-8. Co/FeGd/Co 三層膜における各元素の磁化回転モデル

表 5-1. 磁気反射率プロファイル測定条件

E (eV)	2θ (°)	q_z (Å ⁻¹)	Step (°)	Measurement time (sec/point)	Mo thickness (μm)	count rate (×10 ⁶ cps)
Co-K:7720	1.2~2	0.082~0.137	0.02	20	15	1.2
Fe-K:7112	1.3~2.16	0.082~0.136	0.02	20	15	0.5
Gd-L ₃ :7243	1.26~2.14	0.081~0.137	0.02	20	15	0.6

表 5-2. 磁気反射率ヒステリシス測定角度

E (eV)	2θ (°)	q_z (Å ⁻¹)	$(P^+ - P^-) / 2$ (×10 ⁻³)
Co-K:7720	1.4	0.096	0.89
Fe-K:7112	1.54	0.097	1.02
Gd-L ₃ :7243	1.5	0.096	7.39

6章 Gd 磁化回転と面内磁気異方性の関係

6-1 磁化容易軸と異方性エネルギー

TM/FeGd/TM (TM=Fe,Co) 三層膜の磁化回転と磁気異方性について議論する前に、磁化容易軸と異方性エネルギーの基礎的な説明をする。強磁性体の自発磁化は結晶の特定方向を向く。例えば bcc-Fe [100]、hcp-Co [001]である。この方向のことを磁化容易方向といい、その強弱を定量評価するため磁気異方性エネルギーが定義される。このエネルギーは結晶の対称性を考慮し、系のエネルギーを結晶軸と磁化方向のなす角の方向余弦の、べき級数で展開したもので、立方晶の場合は

$$E_A = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_4^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \dots \quad (6-1)$$

($\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$: 結晶の x, y, z 軸に対する磁化方向の方向余弦、 K_1, K_2 : 異方性定数)

で表される。一般に K_2 は K_1 に比べ小さいので、 $K_2 = 0$ とすれば $K_1 > 0$ で磁化容易軸は $\{100\}$ に、 $K_1 < 0$ で磁化容易軸は $\{111\}$ になる。また六方晶の場合は磁化方向と c 軸のなす角度を θ とすると

$$E_A = K_{u1} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta + \dots \quad (6-2)$$

で表せる。一般に K_{u2} は K_{u1} に比べ小さいので、 $K_{u2} = 0$ とすれば $K_{u1} > 0$ で磁化容易軸は c 軸に、 $K_{u1} < 0$ で磁化容易軸は c 面内になる。

磁気異方性定数 K は磁場を磁化容易軸からずれた方向に印加したときに働くトルクを測定し、トルク曲線の振幅から決定することができる [6-1]。

Fe/FeGd/Fe、Co/FeGd/Co 三層膜に上記の方法を直ちに適用することはできない。三層膜は複数の元素から構成されている上、X 線回折の結果からアモルファスまたは多結晶構造であることが明らかになっている。そのため磁気トルク測定によって特定の結晶面に磁場をかけて異方性定数を求めることができない。このような場合は磁化曲線を解析することで試料の磁気異方性エネルギーを見積もることが可能である。試料面内のある方向に磁場を印加したときの飽和磁場は磁気異方性エネルギーが大きいほど高い。このことを利用して、面内で様々な方向に磁場を印加

して磁化曲線を測定することで磁気異方性エネルギーの分布を知ることができる。具体的には図 6-1 (a) に示す磁化曲線と y 軸で囲まれる面積で表される。

$$E_A = \int_{M_r}^{M_s} HdM \quad (6-3)$$

(M_s : 飽和磁化、 M_r : 残留磁化)

つまり飽和させるために要したエネルギーがその角度での異方性定数の概略値である。

6-2 磁化測定による異方性エネルギーの評価

4 章に Fe/FeGd/Fe 三層膜 : Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å] / Si (111)、5 章に Co/FeGd/Co 三層膜 : Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å] / Si (111) の磁化回転モデルを示した。Gd 磁化について注目するとそれらは一方向回転と両方向回転という異なった磁化回転で説明することができた。Fe/FeGd/Fe 三層膜において零磁場で特定の方向($\alpha=135\sim145^\circ$ 、 $200\sim210^\circ$)に Gd 磁化が向き一方向の回転をする理由は、面内の一軸磁気異方性の存在であると推定した。Co/FeGd/Co 三層膜では一軸異方性が存在しない、もしくは存在しても非常に弱いために両方向回転を引き起こすと考えられる。

式 6-3 で定義された E_A の値は人工フェリ磁性体の磁化過程においてスピンプロップ後 (twisted) の磁気異方性を評価する意味では重要な指標である。しかし零磁場付近からスピンプロップが始まる磁場 (aligned-twisted 転移) の異方性を定量評価する場合は図 6-1 (b) に示すように aligned 状態を一種の飽和状態と考えて異方性エネルギーを定義する必要がある。三層膜の磁化容易軸方向に磁場を印加した場合、磁化は直ちに aligned 状態、すなわち M_r の値を持つ。しかし容易方向から磁場を傾けて印加すると零磁場では $M_{r-\delta}$ の磁化を持ち異方性エネルギーは

$$E_A = \int_{M_{r-\delta}}^{M_r} HdM \quad (6-4)$$

で表される。磁化測定および RXMR ヒステリシス測定から Gd の回転が始まるのは Fe/FeGd/Fe 三層膜で 900 Oe、Co/FeGd/Co 三層膜で 440 Oe であったので ± 1000 Oe の範囲で磁化測定を行った。実験配置を図 6-2 に示す。座標系は図 2-13 に示す磁気反射率実験と同じである。試料面内で磁場を印加する方向を β と定義する。 $\beta = 0$ は磁気反射率測定の際に X 線を入射した方向である。電磁石を回転することができないため、試料を反時計回転することで β を変化させた。刻み幅は 22.5° である。実験結果を図 6-3 に示す。零磁場付近の磁化曲線が良く見えるようにグラフ範囲は 0~200 Oe の範囲となっている。両試料で $M_{r-\delta}$ の変化は大きいが H_{aligned} の差は小さい。 M_r はどの角度においても一定であるとすれば異方性エネルギーは

$$E_A(\beta) \propto M_r - M_{r-\delta} \quad (6-5)$$

の関係がある。零磁場において磁化は容易軸方向に向くため残留磁化は最大になり、その場所が最安定であるので異方性エネルギーは最小になるというように、定性的な異方性エネルギーの評価は式 6-5 の関係で行うことができる。図 6-4 に磁化測定から得られた残留磁化の角度分布について示す。ただし残留磁化の値は $(|+M_r| + |-M_r|)/2$ を用いた。

Fe/FeGd/Fe 三層膜では $\beta = 0^\circ$ において M_r は約 0.001 emu となり角度を変化させると M_r は増加する。 $\beta = 67.5^\circ$ 付近において最大値 (約 0.002 emu) になった後減少し、 $\beta = 135^\circ$ 付近において最小値 (約 0.0005 emu) をとる。その後、 $\beta = 180^\circ$ まで増加する。残留磁化の変動周期が 180° であるため一軸の磁気異方性が存在することが明らかになった。図 6-5 は異方性エネルギーの角度分布と容易軸、困難軸の関係である。 M_r の値は図 6-3 に示す九つの Fe/FeGd/Fe 磁化曲線における 200 Oe での磁化の平均値を用い 2.119 emu とした。また $\beta = 67.5^\circ$ 付近は磁化容易軸、 $\beta = 135^\circ$ 付近は磁化困難軸に対応する。

一方 Co/FeGd/Co 三層膜の残留磁化分布の角度依存は Fe/FeGd/Fe 三層膜と比較して顕著ではない。異方性エネルギーの角度分布は Fe/FeGd/Fe 三層膜と同様に、図 6-3 に示す九つの Co/FeGd/Co 磁化曲線における 200 Oe での磁化の平均値 $M_r = 1.366$ emu を用いて計算した。 $\beta = 0^\circ$ 付近を容易軸とみなすことは可能ではあるが、困難軸が Fe/FeGd/Fe 三層膜と比較して明確でない。異方性の強さを比較するために磁化容易軸と困難軸の残留磁化の比 $M_{\text{hard}}/M_{\text{easy}}$ を求めた。 $M_{\text{hard}}/M_{\text{easy}} \approx 1$ で異方性なし、 $M_{\text{hard}}/M_{\text{easy}} \ll 1$ で強い異方性を持つ。Fe/FeGd/Fe 三層膜では 0.23、

Co/FeGd/Co 三層膜では 0.67 であるので Fe/FeGd/Fe 三層膜の異方性が強いことが分かる。異方性エネルギー比 $E_{A\text{hard}}/E_{A\text{easy}}$ を求めると、Fe/FeGd/Fe 三層膜では 26.6、Co/FeGd/Co 三層膜では 6.2 となる。これらの理由から Co/FeGd/Co 三層膜の面内の異方性エネルギー分布は等方的であるとみなすことができる。

6-3 Gd 磁化回転方向と異方性エネルギー

Fe/FeGd/Fe 三層膜は一軸異方性をもち、Co/FeGd/Co 三層膜は異方性エネルギー分布が等方的であることが示された。続いて、磁化回転モデルで説明される Gd モーメント挙動は図 6-5 においてどのようなエネルギー変化に対応するのか、面内の異方性エネルギー分布形状と容易軸と磁場方向に注目して考察する。ここで混乱を避けるため RXMR ヒステリシスで用いた角度の定義 α と磁化測定での角度の定義 β を統一する。 $\beta=(180-\alpha)$ の関係を用いて RXMR ヒステリシス測定で求めた Gd 磁化ベクトルの位置を異方性エネルギー図に対応させる。

Fe/FeGd/Fe 三層膜は 4 章で示した A および B 配置で RXMR ヒステリシス測定を行っているが、ここでは A 配置について説明する。零磁場において Gd 磁化ベクトルは最安定な磁化容易方向に向く (図 6-6 (a))。僅かに磁場を印加すると反時計回転を生じ、aligned 状態になる。Gd 磁化ベクトルは磁場と反平行状態 ($\beta=0^\circ$ 、 $\alpha=180^\circ$) にあり、エネルギー図において坂の途中に押し上げられている状態になる (図 6-6 (a))。それから磁場を H_{sf} より強く印加すると時計回転を生じ、エネルギー図において最安定箇所である容易軸方向を通過し坂を上る (図 6-6 (c))。この磁化プロセスは磁化容易軸に対して非対称な異方性エネルギーの分布によって引き起こされると考えられ、常に異方性エネルギーが低くなる方向に Gd 磁化ベクトルが向くルールで説明できる。ただし、 H_{sf} を越えた twisted 領域では異方性の効果より Fe 層と FeGd 合金層の交換結合エネルギーが支配的になるため、1500 Oe では磁場に直交方向に近い方向がエネルギー的に安定になる。また十分に強い磁場を印加した場合は磁場方向 ($\beta=180^\circ$ 、 $\alpha=0^\circ$) を向くことが予想される。B 配置についても同様に説明することができる。

Co/FeGd/Co 三層膜の場合、わずかに磁場を印加した aligned 領域では、Gd 磁化ベクトルは磁場と反平行状態 ($\beta=0^\circ$ 、 $\alpha=180^\circ$) になる (図 6-7

(a))。磁場を H_{sf} より強く印加し、twisted 領域になると等方的エネルギー分布によって磁化が二つの成分に分離して、お互い反対方向に回転すると考えられる (図 6-7 (b))。磁場印加方向を変えた場合についても面内の異方性が小さいため、面内において Gd 磁化は多磁区を形成する方が安定であり、磁場に対し垂直方向の磁化成分を打ち消し回転することが予想される。

Fe/FeGd/Fe 三層膜では異方性エネルギー分布が強く、磁化容易軸に対して非対称に異方性エネルギーが分布することが原因で一方向回転が引き起こされたと考えられる。一方、Co/FeGd/Co 膜は面内の異方性が小さく、等方的なエネルギー分布を持つことが原因で両方向回転が生じたと考えられる。

異方性の強さは試料固有のものであるか、もしくは Fe/FeGd/Fe 三層膜が強く、Co/FeGd/Co が弱くなる傾向があるのかを調べるために、他の Fe/FeGd/Fe、Co/FeGd/Co 三層膜について異方性の強さ M_{hard}/M_{easy} 比を調べた。表 6-1 に示す結果から Fe/FeGd/Fe 三層膜は異方性が強く、Co/FeGd/Co 膜は弱い傾向があることが分かった。その理由として、誘導磁気異方性が考えられる。誘導磁気異方性は、結晶磁気異方性が打ち消されるアモルファスもしくは多結晶構造で引き起こされる薄膜の磁気異方性であり、一軸性の異方性を生じる。そのため観測された結果と一致する。この異方性は規則不規則変体する合金を磁場中で規則化処理し冷却することで発生する磁場中冷却効果、結晶粒の長手方向が容易軸となる形状効果、その他磁歪の逆効果である応力効果によって生じる。実験に用いた試料は磁場中冷却処理、また熱歪みなどの応力がかかる加熱処理などはおこなっていない。そのため形状磁気異方性が原因である可能性がある。試料作製中、蒸着方向に起因する異方性をなくすため約 30 rpm の速度で基板回転を行ったが、Fe/FeGd/Fe 膜の膜成長過程で特定方向に長手となる結晶粒の成長が生じたのかもしれない。

6-4 まとめと考察

真空蒸着法で作製した TM/FeGd/TM (Fe,Co) 三層膜について RXMR 法によって元素選択的な磁化過程を調べた。TM/FeGd/TM 三層膜の構造はアモルファス構造もしくは多結晶構造であることが X 線回折の結果から示された。また両試料のマクロな磁化配列は上下 TM 層磁化が FeGd

フェリ磁性合金層の正味磁化よりも大きいいため磁場方向に TM 層磁化が向き、TM 層と FeGd 層の反強磁性結合のため FeGd が磁場に反平行を向く人工フェリ磁性体であり、FeGd 補償組成よりも Gd が優勢であるため正味磁化方向と Gd モーメントが同一方向を向く試料であった。マクロな磁化過程はスピントロップ磁場 H_{sf} によって aligned、twisted の二つの領域に分けられ、aligned では TM 層と FeGd 合金層の Fe は磁場方向、Gd 方向は磁場に反平行方向、twisted では TM 層は磁場方向のまま Fe、Gd が反平行カップルした状態で磁場方向から面内で傾くことが磁化曲線形状やメスバウアー測定、計算から予想されていた [6-2,3]。

Fe/FeGd/Fe 三層膜については Gd- L_3 端にて RXMR ヒステリシス測定を行い Gd の面内磁化反転をベクトル的に検出し明らかにすることができた。ベクトル磁化過程の挙動から FeGd 合金層の Gd は aligned 状態では磁場に反平行配列し、スピントロップ磁場に達すると深さ方向の磁気構造をほとんど保持したまま磁場方向に向かう一方向回転することが明らかになった。ただし界面には磁壁をわずかに形成している部分があると考えられる。Co/FeGd/Co 三層膜については Co- K 、Fe- K 、Gd- L_3 端にて RXMR ヒステリシス測定を行い、それぞれの元素のベクトル磁化過程について明らかにすることができた。Co 層は保磁力の小さな強磁性体の磁化反転を示した。Gd 磁化は aligned 状態では磁場に反平行配列するが、反転過程で磁場に直交する磁化成分を打ち消しながら回転することが明らかになった。Fe 磁化に関しては Gd と反平行カップルすることが推察された。

両三層膜の回転モードの違いを面内の磁気異方性に着目して説明を行った。Gd 回転モードは異方性エネルギーの強さ、分布形状と印加磁場方向の関係により決定されると結論づけた。Fe/FeGd/Fe 三層膜では異方性が強く、磁化容易軸に対して非対称に異方性エネルギーが分布しており、容易軸と磁場方向が傾いていた。これらの理由で一方向回転が引き起こされたと考えられる。一方、Co/FeGd/Co 三層膜では等方的にエネルギーが分布し、エネルギー勾配が小さかった。そのため磁化が面内で分裂してお互いに逆方向に回転する両方向回転が引き起こされたと考えられる。Fe/FeGd/Fe 三層膜は磁気異方性が強い傾向がある。この原因は面内の特定方向に長手方向をもつ成長によって生じた誘導異方性によるとした。

6 章 参考文献

- [6-1] 近角聰信：磁性体の物理（下）（裳華房 1984）.
- [6-2] M. Motokawa and H. Dohnomae: J. Phys. Soc. Jpn. **60** 1355 (1991).
- [6-3] H. Dohnomae: J. Phys. Soc. Jpn. **60** 759 (1993).

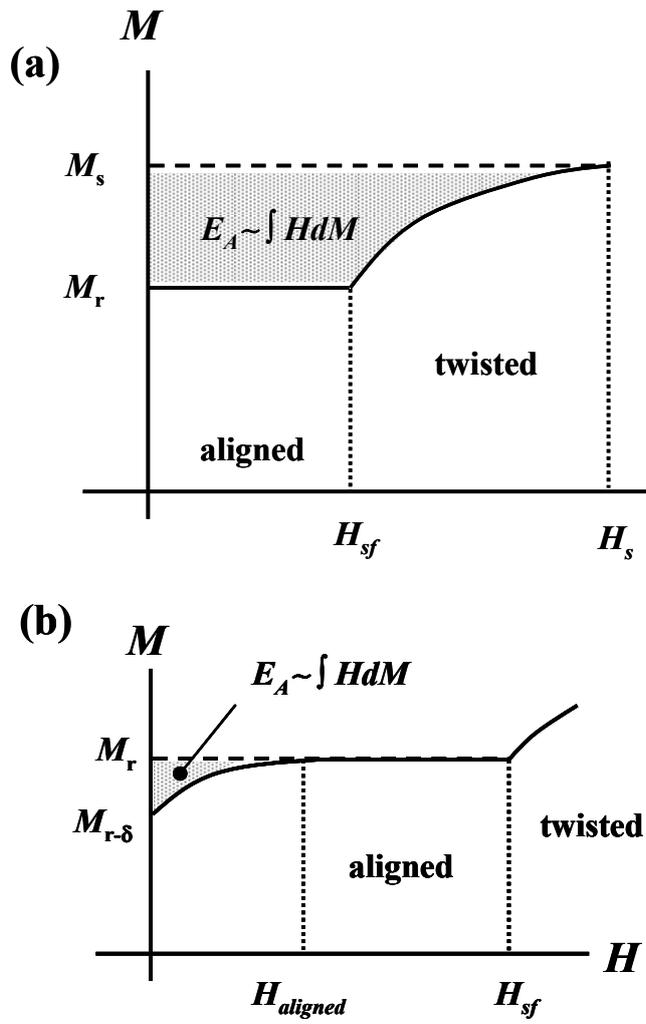


図 6-1. 磁化曲線と異方性エネルギー (a) スピントロップ後飽和状態まで考慮した場合、(b) スピントロップ磁場まで考慮した場合

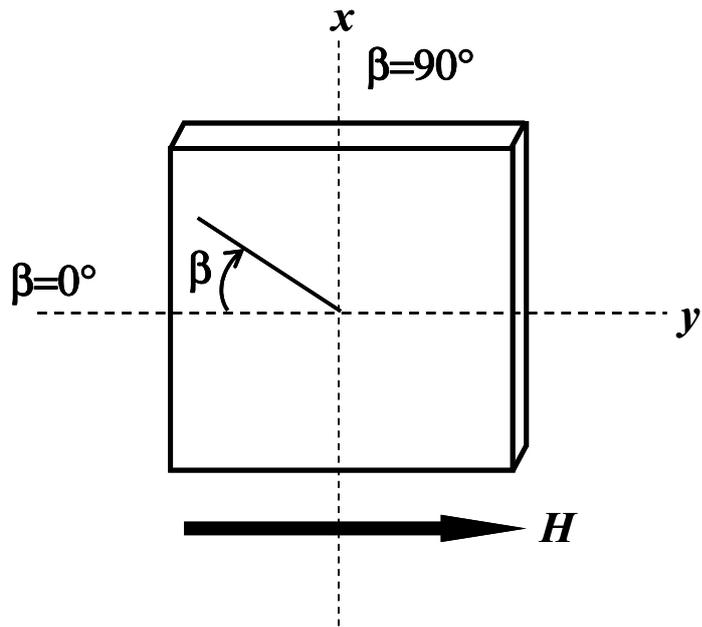


図 6-2. 磁化測定 of 座標系

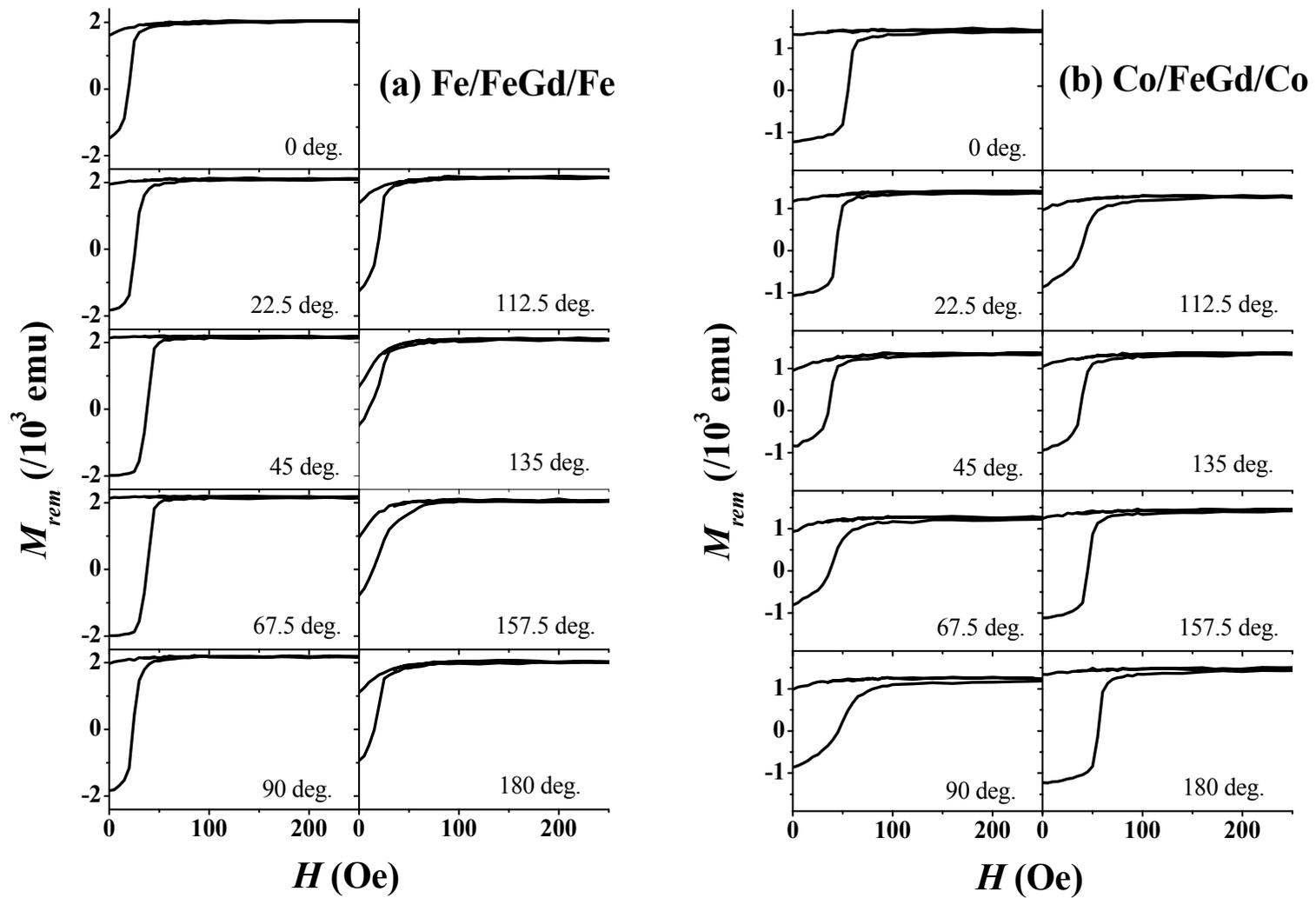


圖 6-3. 磁化測定結果 (a) Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å]三層膜、(b) Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å]三層膜

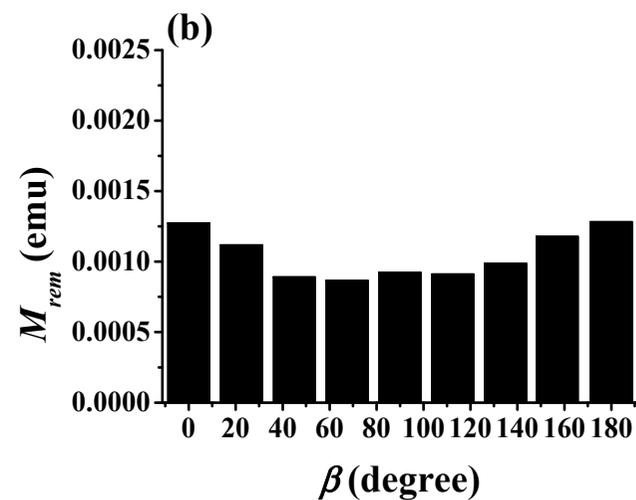
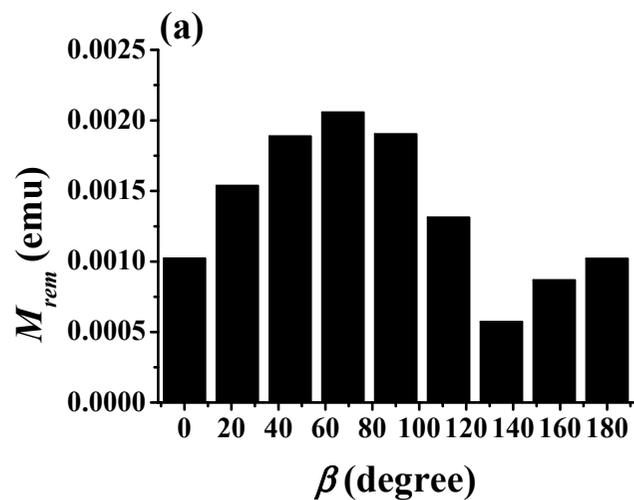


図 6-4. 残留磁化の角度分布 (a) Fe[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[300 Å] / Fe[140 Å]三層膜、(b) Co[140 Å] / Fe₆₀Gd₄₀[400 Å] / Co[140 Å]三層膜

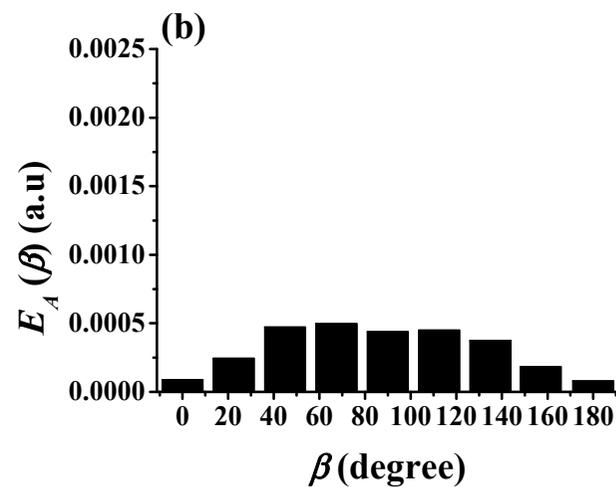
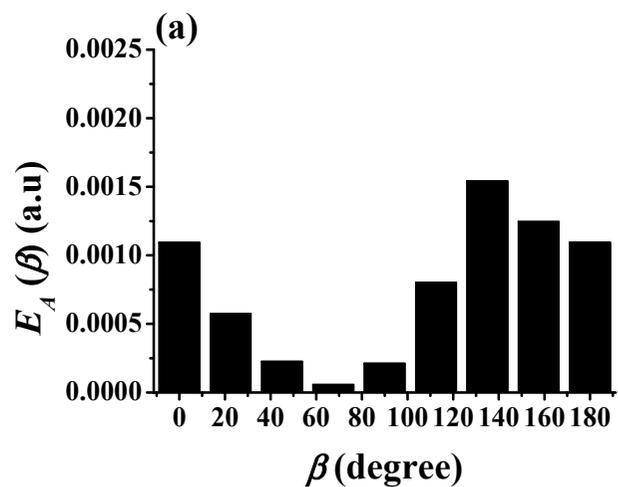


図 6-5. 異方性エネルギーの角度分布 (a) Fe/FeGd/Fe 三層膜、(b) Co/FeGd/Co 三層膜

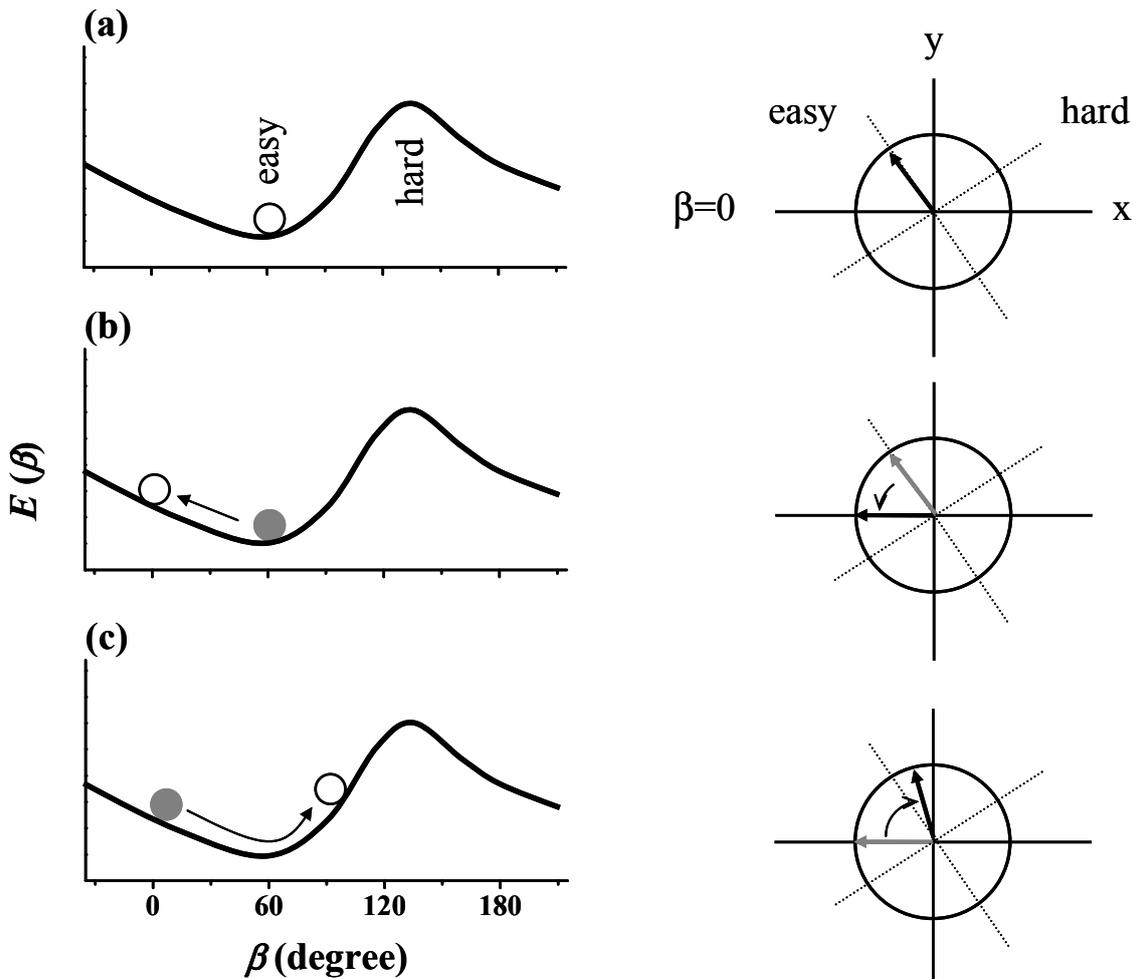


図 6-6. Fe/FeGd/Fe 三層膜の磁化回転方向と異方性エネルギーの関係
 (a)aligned 状態、(b)零磁場、(c)aligned から twisted 状態への磁化回転

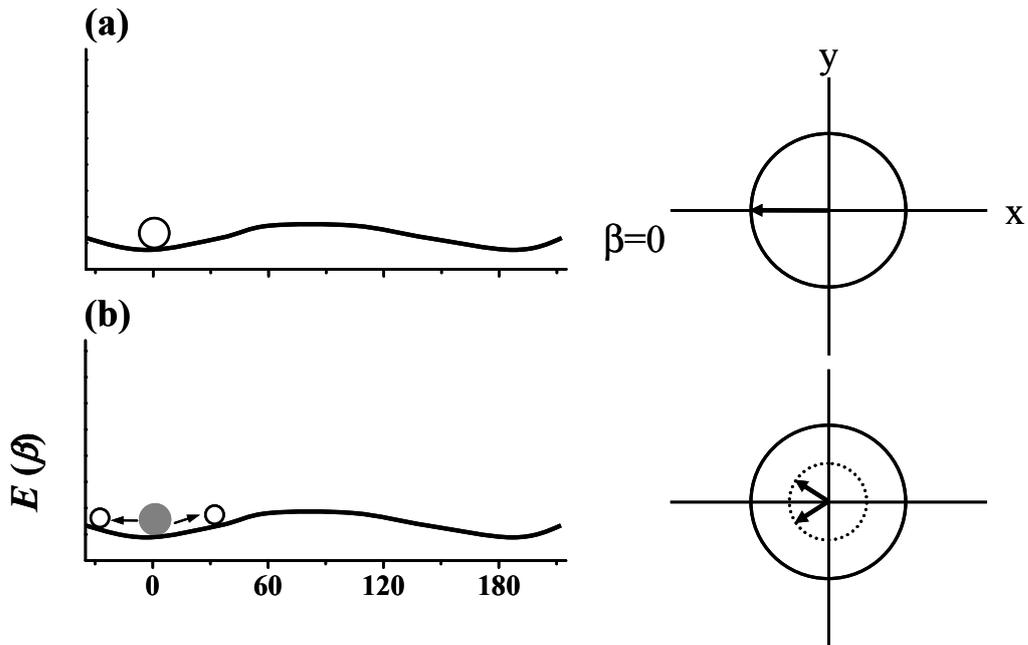


図 6-7. Co/FeGd/Co 三層膜の磁化回転方向と異方性エネルギーの関係
 (a) aligned 状態および零磁場状態、(b) 磁化回転

表 6-1. Fe/FeGd/Fe と Co/FeGd/Co 三層膜の困難軸と容易軸方向の残留磁化の

Fe/ FeGd (t)/ Fe (Å)	$M_{\text{hard}}/ M_{\text{easy}}$	Co/ FeGd (t)/ Co (Å)	$M_{\text{hard}}/ M_{\text{easy}}$
200	0.37	100	0.48
250	0.23	200	0.69
300	0.28	300	0.66
350	0.27	400	0.67

比

7章 共鳴 X 線磁気反射率法を用いたその他の研究

7-1 Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜における Au の磁気分極

理論的に可能であると考えられていた RXMR プロファイル測定が TM/FeGd/TM (TM=Fe、Co) を用いた Gd- L_3 、Fe-K、Co-K 端での実験によって確かめられた。積層周期の少ない磁気構造の磁気分極分布についても RXMR プロファイルを詳細に解析することにより明らかできる可能性がでてきた。

RXMR 法の適応範囲を広げるために非磁性層の磁気分極に対する測定を試みることにした。試料には Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜を選んだ。Fe/Au の界面では Fe の 3d 電子と Au の 5d 電子の混成によって Au に磁気分極が生じることが知られている。Ohkochi らはエピタキシャル Fe/Au (001) 多層膜の Au- L_3 端 RXMD 実験を行い、その解析によって Au の磁気散乱因子は界面でやや大きく、Fe と接していない内部の Au 層にも比較的大きく、かつ一様に分布することを明らかにした [7-1,2]。このように Au の磁気分極分布がほとんど明らかになっているため、プロファイルの解析が容易になることが予想されたこと、そして Au- L_3 が (2p→5d 遷移) が非磁性元素としては大きな磁気シグナルを生じることがこの系を選んだ理由である。

実験には京都大学 (現在、日本原子力研究開発機構) の大河内氏より提供された以下の試料を用いた。

FA2L1 : MgO/Fe(20 Å)/Ag(500 Å)/Fe(15 Å)/Au(50 Å)

FAF1 : MgO/Fe(20 Å)/Ag(500 Å)/Fe(15 Å)/Au(50 Å)/Fe(15 Å)/Mo(20 Å)

実験は SPring-8 のビームライン BL39XU で行った。エネルギーは Au- L_3 端近傍 11921 eV、磁場は±2000 Oe 印加した。測定結果を図 7-1 に示す。両方の試料で RXMR プロファイルが得られた。二層膜と三層膜で電荷反射率プロファイルの違いは良く似ているのに対して、RXMR プロファイルは明らかに異なっている。これは Au 層の片側、両側に分極が誘起される違いを反映していると考えられ、現在プロファイルの解析を進めている。Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜を用いた磁気反射率測定によって二、三層膜中の非磁性層に誘起された磁気分極構造を決定できる可能性が示唆されたといえる。

7-2 CoFe/MnIr 交換バイアス膜の Ir に誘起された磁気分極

界面で起こる興味深い磁気結合の一つとして、強磁性/反強磁性界面の交換バイアス効果が挙げられる。この効果はマクロな磁化曲線の横方向へのシフトとして現れ、一方向磁気異方性ともいわれている。この異方性の起源は反強磁性体の界面付近の非補償スピンであると考えられており、強磁性モーメントに対して colinear な非補償反強磁性スピンが異方性を誘起する Meiklejohn と Bean のモデル [7-3]、強磁性モーメントに non-colinear な非補償反強磁性スピンが異方性を誘起する Koon らのモデルが報告されている [7-4]。

交換バイアス効果は現在 GMR-SV ヘッドの固定層磁化のピン止めに応用されている。HDD の高密度化に伴うリードヘッド素子微細化の結果として生じる反磁場や熱揺らぎに耐える大きな交換異方性と、高いブロッキング温度を備えた強磁性/反強磁性二層膜が必要とされている。その条件を満たす系の一つに CoFe/MnIr 交換バイアス膜が挙げられる。実際に CoFe (free layer) / Cu / CoFe (pinned layer) / MnIr (bias layer) を基本構造とする SV ヘッドは実用化されており、性能向上のために界面構造の制御等、様々な試行錯誤が行われている。近年では絶縁層を介した TMR 素子のピン層としても注目され、MRAM の重要技術にもなっている。

実用上の研究が推進されている一方で、CoFe/MnIr の交換異方性の微視的な起源であるとされる界面での反強磁性非補償スピン構造については理解が進んでいなかったが、近年軟 X 線を用いた X 線磁気円二色性実験によって非補償 Mn の磁化が磁性層に追従することが確認され [7-5]、Mn の磁化過程、界面のスピン構造について徐々に明らかにされてきている。Tsunoda らは MnIr 膜厚を変化させた試料に対して Mn- L_3 端 XMCD スペクトルを測定し、共鳴吸収強度で規格化した大きさの比較を行った [7-6]。その結果から非補償スピンは界面の数原子層に集中していることが報告された。また界面において Mn 磁壁が存在すると述べている [7-7]。しかし MnIr 合金中の非磁性 Ir に関してはこれまで着目されておらず、Ir の誘起磁気分極の存在と磁化過程、交換バイアス効果の発現に及ぼす役割は明らかになっていない。応用面においても Mn-X (X=Ir, Pt, Rh, Ru) 等の物質系の探求が進められていることから非磁性側の分極構造を知ることにも交換バイアスの起源の理解を進めるためには重要である。これまでに Ir に関する XMCD の報告がされていないのには、測定が極めて困難という理由がある。軟 X 線領域での Ir 吸収端 ($M_{4,5}$) は 2 keV 程度であり、通常の XMCD 測定装置のエネルギー範囲から外れている。したがっ

て、硬 X 線での Ir-L 端での測定を行うことになるが、1 つの界面の数原子層に誘起されているであろう Ir 磁気分極からシグナルを検出することはほぼ絶望的で、積算時間をかけても現実的な時間では良いデータが収集できないと考えられていた。非常に小さいと予想される磁気分極に対して RXMR 測定が可能かどうか調べることにした。

CoFe/MnIr の Ir の磁気分極構造を反映する Ir-L₃ 端(2p→5d 遷移)RXMR 測定を試みた。実験には東北大学の角田准教授より提供された以下に示す試料を用いた。

Ta (10 Å) / Ru (10 Å) / Co₇₀Fe₃₀ (200 Å) / Mn₇₃Ir₂₇ (5 Å) / Ru (50 Å) / Ta (50 Å) / Si (111)

下付き添え字は原子%をあらわす

面内に一方向異方性 (バイアス) を付加するため、成長後 553 K で 1 時間 MnIr 規則化加熱処理を行い、3000 Oe 印加した磁場中冷却処理が行われた。VSM による磁化曲線を図 7-2 に示す。ヒステリシスループの中心は約 210 Oe シフトしている。

図 7-3 に SPring-8 のビームライン BL39XU で測定した Ir-L₃ 端近傍 (11222 eV) 電荷反射率および RXMR プロファイルを示す。磁場は±1000 Oe 印加した。この結果から界面の Ir にも磁気分極が誘起されていることが示唆された。縦軸は $\text{diff}^+ - \text{diff}^-$ をプロットした (この理由と diff の意味については 5 章参照)。

Hosoito によって解析された CoFe/MnIr 膜の電荷反射率を図 7-4、解析によって得られた膜厚、表面、界面 rms ラフネス、数密度を表 7-1 に示す。図 7-4 の上図の縦軸は反射率強度を対数で表示した場合、下図は反射率を振動のピーク値の包絡線で規格化した場合である。設計値を元に計算された反射率は実験値とよい一致を示し、精密に構造が決定された。電荷構造の詳細な決定によって、磁気反射率プロファイルの解析が可能となる。Hosoito は Ir の磁気分極の総量を XMCD から導き、MnIr に誘起される分極が界面から一様に減衰するモデルを仮定し、侵入長を変化させ RXMR プロファイルを計算した。解析された CoFe/MnIr 膜の電荷反射率と、磁気分極モデルを図 7-5 に示す。図は上から侵入長 $\lambda=0.3, 10, 40$ Å を仮定した場合の計算と実験の磁気反射率 (左) と対応する磁気分極の深さ構造モデル (右) である。侵入長を大きくすると、各層に分配される磁気散乱振幅が減少するため、計算磁気散乱強度は減少する結果となった。この結果から、磁気分極が界面に集中する磁気構造が妥当であ

ると考えられる。

$2\theta=1.4^\circ$ に固定して Ir- L_3 端近傍 (11222 eV) RXMR ヒステリシス測定をおこなった。図 7-6 (a) に平行、垂直配置での実験結果を示す。平行配置ではヒステリシスが確認され、垂直配置では常に一定値を示す結果となった。このことから Ir に誘起された分極は磁場と colinear であることが理解できる。比較のため Co-K 端近傍 (7714 eV) RXMR ヒステリシス測定をおこなった。 $2\theta=1.8^\circ$ で散乱角を固定した。測定結果を図 7-4 (b) に示す。Ir の場合と同様に平行配置ではヒステリシスが確認され、垂直配置では常に一定値を示す結果となった。異なる点は Co のヒステリシスにはバイアス効果が確認され負方向の横シフトが存在することである。しかしマクロな磁化曲線で確認されたバイアス磁場に比べ小さくなっている。この理由は今後の検討課題である。これまでに報告された Mn の XMCD ヒステリシスは強磁性層のバイアス磁場と同じ大きさのバイアス磁場をもっていた。しかし Ir では零である。この件についても今後考察する必要がある。

磁気物性に関しては議論の余地が沢山残されているが、CoFe/MnIr 二層膜の Ir に関する磁気反射率プロファイル、ヒステリシス測定に成功した。Ir の磁気分極は界面の数原子層に存在する可能性が大きく、その元素選択ヒステリシス測定の成功によって、磁気反射率測定が高感度磁気測定として有効であることが証明された。今後 Mn、Fe の振る舞いについて調べ詳細な議論を行う予定である。

7-3 今後の研究展開

本研究によって理論的に測定可能と考えられていた、RXMR 法を実験的に確かめることができた。解析方法の確立には系統的なデータを収集する実験を重ねる必要があるが、RXMR 法を利用した磁気物性研究を行う段階に入ったと考えている。

今後の発展として、面内に磁気異方性を有する試料について磁気反射率実験を行い磁化過程、磁気分極構造との関連について精密に調べたい。交換バイアス膜の界面磁性の研究を進める。

また、これまでに行った研究はいずれも室温での実験であり、今後は極低温等、測定環境を変化させた数層膜の磁性研究への発展が期待される。4f 強磁性/非磁性二層膜の常磁性-強磁性相転移における非磁性の分

極構造や、強磁性/反強磁性二層膜における反強磁性-常磁性相転移における界面磁性などが興味深い。特に非磁性に関しては白金族元素が硬 X 線領域の RXMR 測定に好ましいことが分かっている。白金族は HDD、MRAM 等に利用されており、応用材料研究の観点からも研究を行っていく意義が大きい。

RXMR、XMCD に加えて、光電子顕微鏡 (PEEM) による磁気イメージングを利用して多角的に磁性研究を展開したい。Fe/FeGd/Fe 三層膜、Co/FeGd/Co 三層膜の Gd 元素に注目した RXMR 測定、XMCD 測定の結果について、単一の磁化ベクトルが試料面内で一方向に回転するモデルと 2 つの磁化ベクトルがお互いに反対方向に回転するモデルによって説明することができたが、実空間における Gd モーメントのどのような磁気ドメインの挙動が、測定された RXMR ヒステリシスに対応するのかについて明らかではない。ドメインについて元素選択イメージングを行う手法として、XMCD、磁気線二色性 (XMLD) を利用した光電子顕微鏡 (PEEM) による観察がある。PEEM は光励起により試料表面から放出される光電子分布を電子レンズにより拡大して結像する顕微鏡で、励起光に円偏光、直線偏光 X 線を用いることで強磁性体、反強磁性体のドメインを数十から数百 nm の高い空間分解能で観察することができる [7-8]。PEEM によるドメイン観察は光電子が脱出可能な深さに限定されるために、表面もしくは比較的浅い場所にある界面に関しては軟 X 線を用いた観察が可能であるが、深く埋もれたドメインを観察するためには硬 X 線領域で PEEM 観察を行うことでイメージングできる可能性がある。現状では 50 nm から 200 nm の Co 層の下に埋め込まれた Au の微細構造を Au-L 端による PEEM によってイメージングした例 [7-9] が報告されており、深く埋もれた微細磁気構造についてのイメージングの実現が期待される。

7章 参考文献

- [7-1] 大河内拓雄：強磁性/非磁性多層膜における非磁性多層膜中のスピ
ン分極の深さ分布,京都大学博士論文 (2006) .
- [7-2] T. Ohkouchi, K. Mibu and N. Hosoi: J. Phys. Soc. Jpn. **75** 104707
(2006).
- [7-3] W. H. Meiklejohn and Bean: Phys. Rev. **102** 1413 (1956).
- [7-4] N. C. Koon: Phys. Rev. Lett. **78** 4865 (1997).
- [7-5] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A.T. Young, M.
Carey, and J. Stöhr: Phys. Rev. Lett. **91** 017203 (2003).
- [7-6] M. Tsunoda, S. Yoshitaki, Y. Ashizawa C. Mitsumata, T. Nakamura, H.
Osawa, and T. Hirono, D. Y. Kim and M. Takahashi: J. Appl. Phys. **101**
09E510 (2007).
- [7-7] M. Tsunoda, T. Nakamura, M. Naka, S. Yoshitaki, C. Mitsumata, M.
Takahashi: Appl. Phys. Lett. **89** 172501 (2006).
- [7-8] 奥田太一、木下豊彦：表面科学 **26** 19 (2005).
- [7-9] 小野寛太、尾嶋正治：放射光 **18** 176 (2005).

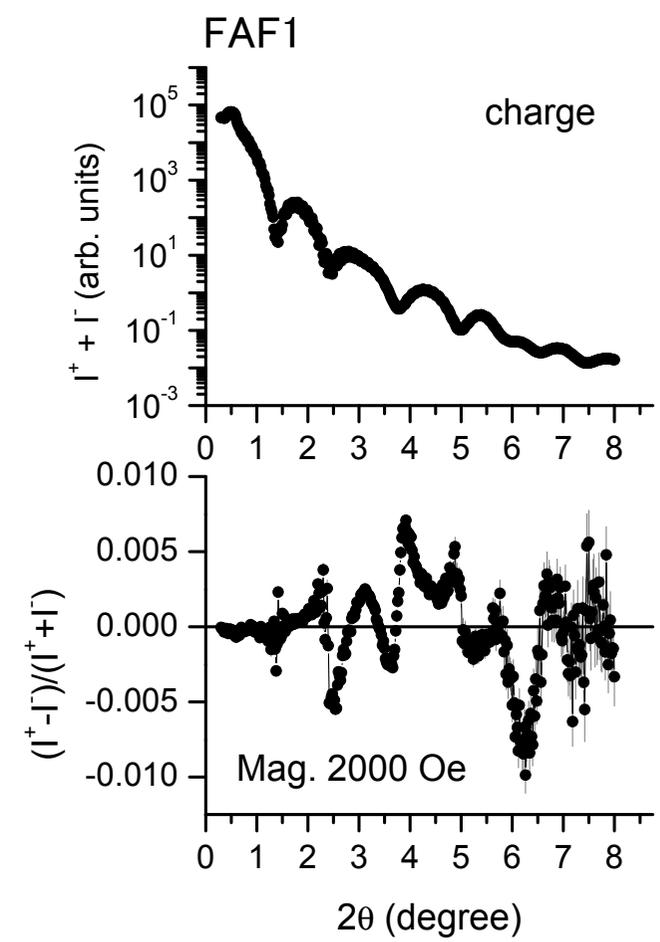
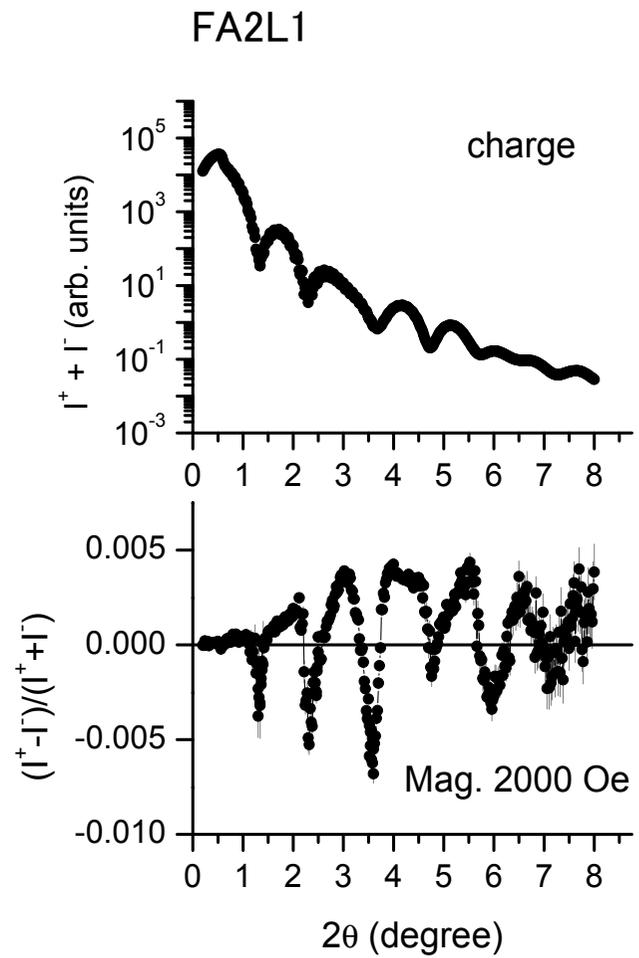


図 7-1. Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜の電荷反射率および磁気反射率プロファイル (Au- L_3 端近傍 11921 eV)

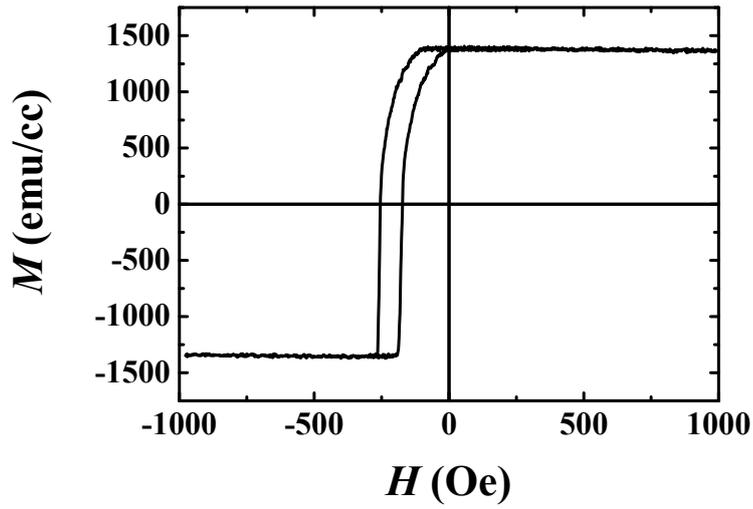


図 7-2. CoFe/MnIr 二層膜の磁化曲線

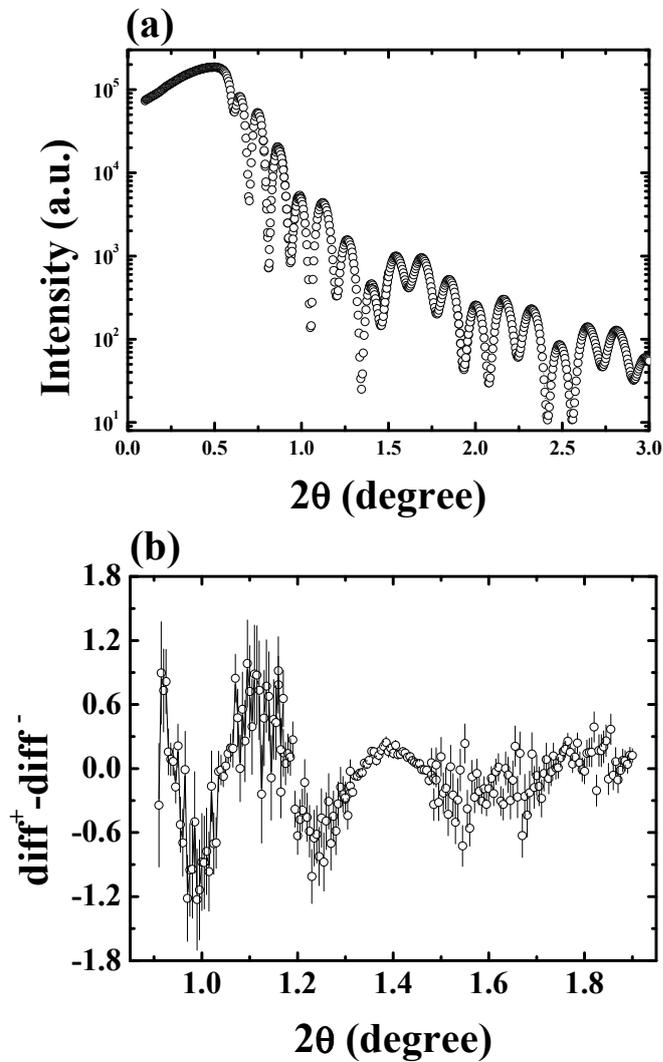


図 7-3. CoFe/MnIr 二層膜 $\text{Ir}L_3$ 端近傍 (11222 eV) (a) 電荷反射率、(b) 磁気反射率プロファイル

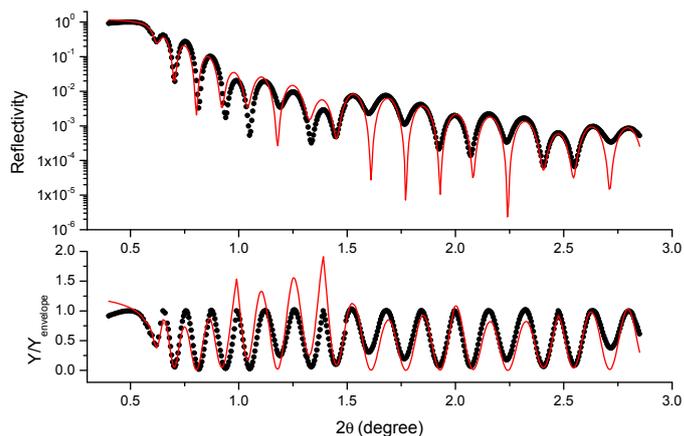


図 7-4. CoFe/MnIr 二層膜 IrL_3 端近傍 (11222 eV) 電荷反射率解析結果

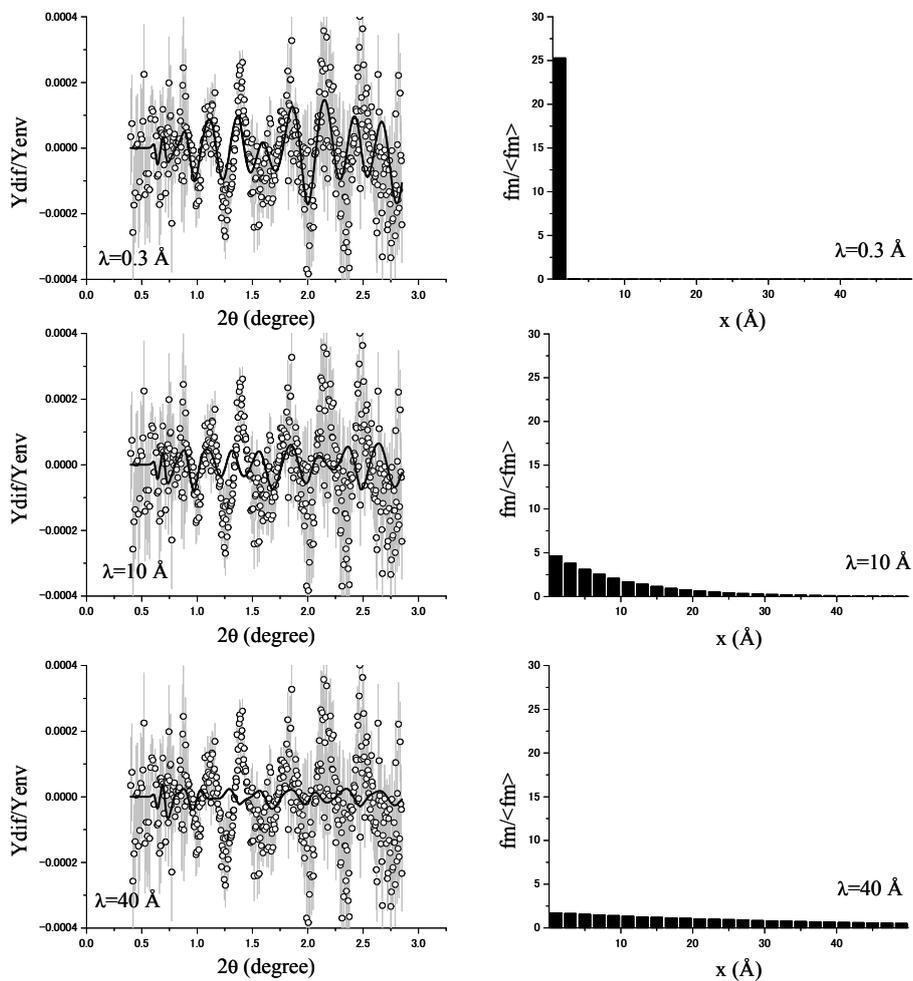


図 7-5. CoFe/MnIr 二層膜 IrL_3 端近傍 (11222 eV) 磁気反射率プロファイル解析結果 左：実験および計算による磁気反射率プロファイル、右：Ir に誘起された磁気分極の深さ分布 図中 λ は侵入長を表す

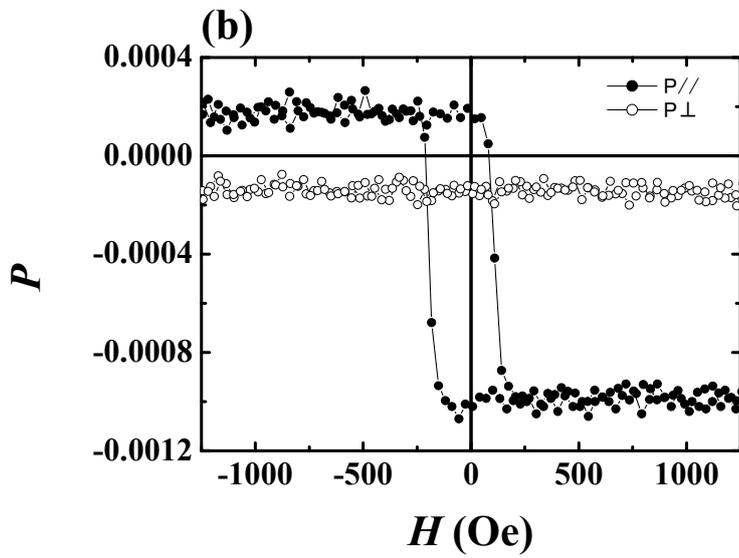
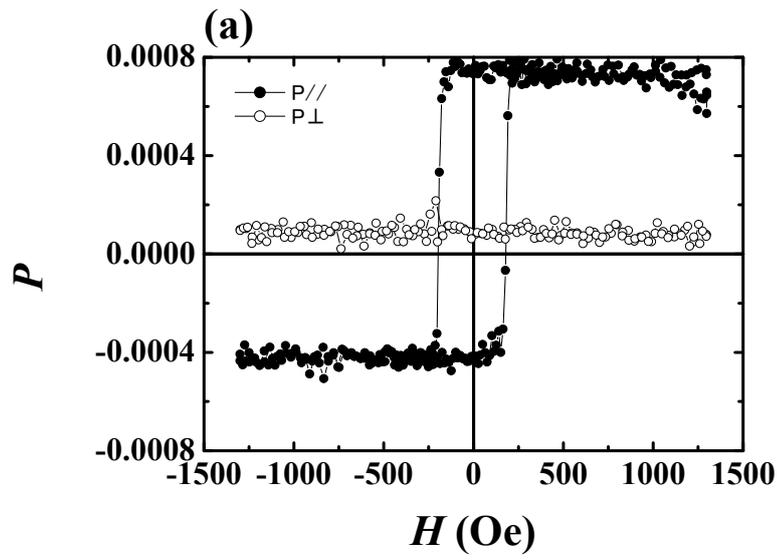


図 7-6 CoFe/MnIr 磁気反射率ヒステリシス測定 (a) Ir L_3 端近傍 (11222 eV)、
(b) Co-K 端近傍 (7714 eV)

表 7-1. CoFe/MnIr 膜の膜厚、ラフネス、密度

atoms	t (Å)	σ_{rms} (Å)	ρ_0 ($\times 10^{22}/\text{cm}^3$)
Ta	0.958	1.1024	5.55
Ru	0.958	1.1024	7.42
CoFe	223.26	1.1024	8.99
Mn ₃ Ir	49.891	1.1024	7.47
Ru	54.73	1.1024	7.42
Ta	54.732	1.1024	5.55
Si	-	1.1024	4.99

8章 総括

以下に示す2つの目的に沿って本研究を行った。

第一の目的

共鳴 X 線磁気反射率法を興味ある様々な磁気物性を示す二層膜、三層膜に適用して、原理的に測定可能であると考えている磁気反射率ヒステリシス、磁気反射率プロファイルが実験的に得られるかを検証する。また得られたデータについて考察し、従来手法に対する長所、短所を明確にすることを通じ、共鳴 X 線磁気反射率法が基礎的磁気物性および実用材料開発に対して意義のある磁性研究手法になりうるかを判定する。

第二の目的

以下に示す二層膜、三層膜について、磁化測定、磁気円二色性などの従来の磁性研究手法により得られる情報と、共鳴 X 線磁気反射率法による元素選択的ヒステリシス、反射率プロファイルによって得られると期待される情報を元にして、総合的に考察を行う。従来の研究手法のみでは知ることが困難であった、基板上に作られた二層、三層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁化過程、磁気分極構造の詳細について議論し、明らかにする

- Fe/FeGd/Fe 三層膜
- Co/FeGd/Co 三層膜
- Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜
- CoFe/MnIr 二層膜

本研究において上記の目的に対して、以下に示す結論を得た。

第一の目的に対して

結論 1.

下記の測定結果から原理的に可能であると考えていた共鳴 X 線磁気反射率ヒステリシス、および共鳴 X 線磁気反射率プロファイルが測定可能であることを実験的に明らかにした。

- ・ Fe/FeGd/Fe 三層膜において Gd- L_3 吸収端で共鳴 X 線磁気反射率ヒステリシスおよびプロファイルを得た。
- ・ Co/FeGd/Co 三層膜において Gd- L_3 、Co- K 、Fe- K 吸収端で共鳴 X 線磁気反射率ヒステリシスおよびプロファイルを得た。
- ・ Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜において、Au- L_3 吸収端で磁気反射率プロファイルを得た。
- ・ CoFe/MnIr 二層膜において、Co- K 、Ir- L_3 吸収端で共鳴 X 線磁気反射率ヒステリシスを、Ir- L_3 吸収端で共鳴 X 線磁気反射率プロファイルを得た。

結論 2.

下記の結果より、共鳴 X 線磁気反射率法は基礎的磁気物性および実用材料開発に対して有力な磁性研究手法であると結論する。

共鳴 X 線磁気反射率のデータは第二の目的に示す研究を通じて検証した。その結果、明らかとなった共鳴 X 線磁気反射率法の長所、短所について以下にまとめる。

表 8-1. 元素選択的な磁化過程測定法としての共鳴 X 線磁気反射率と磁気円二色性の比較

比較項目	RXMR	XMCD	詳細
測定限界		×	a
ベクトル磁化過程			b
測定対象			c
深さ分解能		×	d

a. 共鳴 X 線磁気反射率測定は数原子層の磁性を検出可能。磁気円二色性では偏光変調法を用いた測定でも数 100~1000 Å の磁性層が必要。測定データのばらつきを考慮すると、測定時間は共鳴 X 線磁気反射率が圧倒的に短い。

b. 共鳴 X 線磁気反射率測定は磁場に対して試料面内で平行成分のヒステリシスに加え、垂直成分のヒステリシス測定の測定が可能である。磁気円二色性でも測定配置を工夫し、X 線と試料の傾きを考慮することで垂直成分の測定が可能であるが、そのように設計された装置はない。

c. 共鳴 X 線磁気反射率測定は基板の厚さ、種類を選ばない。磁気円二色性は透過率の高い基板を利用する必要がある。

d. 共鳴 X 線磁気反射率測定は、次に示す磁気回折法に比べれば磁気構造の深さ分解能は低いが、原理的には深さ分解能がある。このことは、7章で示した。硬 X 線磁気円二色性において、蛍光 X 線の放出角度依存性から深さ分解能を持たせる試みが最近行われている。ただしこの方法は、表面には適用できるが、埋もれた磁性層には適用できない。

表 8-2. 磁気構造の深さ解析法としての共鳴 X 線磁気反射率と共鳴 X 線磁気回折の比較

比較項目	RXMR	RXMD	詳細
深さ分解能 (層内)			a
深さ分解能 (層間)		x	b

a. 層内の磁気構造を調べるには、回折法が圧倒的に有利である。しかし、この磁気構造は多くの層の平均構造であることには注意が必要。

b. 測定対象の磁性層の構造に周期性が無い場合には回折法は使えない。周期構造膜における層ごとの磁気構造の不均一についての情報は、鏡面反射の非 Bragg 点の強度に現れるが、多層膜の非 Bragg 点の強度は、Laue 関数のため抑制されており、測定を行う利点は少ない。反射率法は試料構造に周期性がなくても適用できる。

以上のように共鳴 X 線反射率法は、元素選択的な磁化過程測定に利用されていた、磁気円二色性ヒステリシス法の欠点を克服し、その適用範囲を広げ、ベクトル的な磁化過程を測定可能にした画期的な方法である。また、磁気構造解析の観点からは、適応範囲を周期的多層膜から数層膜に広げた。このことから、共鳴 X 線反射率法は基板上の数層膜の埋もれた層の磁性を研究することができる有力な研究手法であるといえる。本手法により、実用磁性材料の磁性を調べることが可能になるため、今後は基礎的な磁性研究に用いるだけでなく、産業利用なども視野に入ってきた。

第二の目的に対して

結論 3.

従来の研究手法のみでは知ることが困難であった基板上に作られた二層、三層構造の薄膜の埋もれた層の元素選択的な磁化過程、磁気分極構造の詳細について共鳴磁気反射率法を適応することで以下の点を明らかにした。

Fe/FeGd/Fe 三層膜について

Fe/Gd/Fe 膜あるいは Fe/FeGd/Fe 膜は多くの研究がなされている系である。しかし、本研究の成果は、従来の研究結果の追試にとどまるわけではない。Gd の磁化ベクトルが一方向に回転することは理論的には常に仮定されていた。しかし、これまでの実験では、Gd 磁化ベクトルの磁場平行成分のみを観測していたので、実際に一方向回転をしているかどうかは分かっていなかった。本研究で、実際に Gd 磁化ベクトルが一方向回転していることを、新規に提案した磁気反射率ヒステリシス法を用いて証明した。また、面内の磁気異方性の角度分布という視点を導入して、一方向回転するか、双方向回転するかについての判断基準を提案した。

Co/FeGd/Co 三層膜について

従来の Fe/FeGd/Fe 膜の FeGd 合金層の磁化過程に関する研究結果は、

仮想 FeGd 原子の磁化回転について計算されたものであった。また異方性の弱い FeGd 膜の回転に関してこれまでに議論された例はない。本研究では磁気反射率ヒステリシス測定によって Fe、Gd それぞれの元素の磁化回転を直接的に観測した。FeGd 合金層の Fe と Gd は反平行結合を保ったまま、面内で時計、反時計の両成分に分かれ、回転することを明らかにした。また上下の強磁性 Co 層の磁化過程についても明らかにした。人工フェリ磁性構造の強磁性/フェリ磁性/強磁性の全構成元素の磁化過程が明らかになった。

Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜について

本研究では Fe/Au 二層膜、三層膜の Au- L_3 端磁気反射率プロファイルの測定を行った。Au の片側の Fe 層から分極が誘起される場合と、両側の Fe 層から誘起される場合の磁気分極構造の差に起因するであろうプロファイル形状の違いを観測することができた。二層膜の Au で予想される分極の減衰が、三層膜ではどのように変化するのかに興味を持たれる。今後の解析を進める必要がある。

CoFe/MnIr 二層膜について

CoFe/MnIr 交換バイアス二層膜の Ir- L_3 端磁気反射率プロファイル測定から、反強磁性 MnIr 層の Ir に誘起された磁気分極の存在が明らかになった。またプロファイル解析の結果、界面数原子層の Ir に磁気分極が誘起されている可能性が高いことが明らかになった。

磁気反射率ヒステリシス測定によって、界面数原子層に誘起されていると考えられる Ir の磁化過程を明らかにした。このことから磁気反射率法が高感度磁化測定として有効であることが証明された。ヒステリシス形状から界面 Ir は磁場に colinear な磁化過程を生じることが明らかになった。Ir の分極が隣接する強磁性元素の近接効果に由来するのか、もしくは Mn 非補償スピンに由来するものかについて今後議論する必要がある。

謝辞

論文の査読の労をお執りいただきました奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科 片岡幹雄 教授、大門寛 教授、服部賢 准教授、山本愛士 准教授、細系信好 准教授には多くの貴重なご助言、温かいご指導をいただきました。先生方のお力添えにより、学位論文を完成することができました。心より感謝申し上げます。

博士前期、後期課程において終始一貫して丁寧なご指導ご鞭撻をいただきましたナノ構造磁気科学講座の細系信好 准教授に心より感謝と敬意の意を申し上げます。細系先生には研究テーマの選定、実験の遂行、投稿論文執筆のあらゆる場面においてご助言、ご指導をいただきました。そして薄膜磁性や X 線散乱・分光をはじめとした物性に関する多くを、深く学ばせていただきました。また国内外での研究発表、放射光実験の機会を数多く与えていただきました。ありがとうございます。

奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 を退官された橋爪弘雄先生（現在高エネルギー加速器研究機構）には放射光による磁性研究に携わる機会を与えていただきました。心より感謝申し上げます。

本学位論文に示されている共鳴 X 線磁気反射率実験、磁気円二色性実験に関する全てのデータは放射光施設 SPring-8 BL39XU において測定されたものです。本研究は BL39XU の光学システムを利用することによって行うことができました。高輝度光科学研究センター 鈴木基寛氏、河村直己氏には BL39XU での実験において、多大なご協力を頂きました。心より感謝申し上げます。

本学位論文で研究を行った、Fe/Au 二層膜、Fe/Au/Fe 三層膜は京都大学 化学研究所 大河内拓雄氏（現在原子力機構）により提供していただいた試料です。Au- L_3 端において測定した共鳴 X 線磁気反射率プロファイルは、非磁性元素について測定が適応可能であることが確認された初めての試料でした。その測定から非磁性元素に着目する研究が展開されました。また放射光実験において多大なご協力を頂きました。心より感謝申し上げます。

本学位論文で研究を行った、CoFe/MnIr 二層膜は東北大学 工学研究科 角田匡清 准教授、磯上慎二氏により提供していただいた試料です。その試料から得られた磁気反射率プロファイルの解析を通じて、数層膜の磁気構造解析が可能であることが実験的に確かめられました。また放射光実験において多大なご協力を頂き、貴重なご助言も頂くことができました。心より感謝申し上げます。

所属講座の石地耕太郎氏（現在九州シンクロトロン光研究センター）、早崎有一氏をはじめとするメンバー、技術補佐員の林收氏、駒形元郎氏には放射光実験、研究室での様々な実験に関して協力をいただきました。苦楽を共にした大学院生活は大変充実したものになりました。また、甘崎晋次郎氏、徳永真生氏には本学位論文の校正を行っていただきました。心より感謝申し上げます。

最後に、博士課程での研究に関して理解を示していただき、見守っていてくれた父、母そして妹に心からの感謝を記します。

2008 年 3 月 児玉 謙司