

軟 X 線磁気円二色性分光で観る 超高密度垂直磁気記録媒体

安居院あかね 日本原子力研究所関西研究所放射光科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

水牧仁一朗 高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

朝日 透 早稲田大学生命医療工学研究所 〒162-0041 東京都新宿区早稲田鶴巻町513

要旨 今日の高度情報化社会を支える基盤技術の一つにハードディスクを代表とする高密度磁気記録が挙げられる。垂直磁気記録は、超高密度磁気記録方式として30年以上も前に日本から提案されながら技術的困難から実用化されずにいたが、2005年6月に、ついに日本企業が世界に先駆け垂直磁気記録方式を採用した製品の発売を開始した。この次世代の高密度磁気記録媒体には強い垂直磁気異方性を示す磁性材料の研究が不可欠となる。例えば、Co/Pd 人工格子多層膜や希土類-遷移金属アモルファス合金膜が有望な磁気記録材料として注目されている。これまでに、垂直磁化膜の磁気異方性エネルギーや保磁力などのマクロスコピックな報告が多くなされている一方で、それらの磁性膜の構成元素ごとの磁気特性に着目したミクロスコピックな測定から得られる物理量と、それらのマクロスコピックな物理量との相関について論じた研究の例は多くない。本稿では垂直磁化膜の磁気的性質を軟 X 線磁気円二色性分光法を用いて元素選択的・軌道選択的に測定し、ミクロスコピックな観点から人工格子薄膜の下地効果や、アモルファス合金膜で希土類元素が果たす役割などについて研究した例を紹介する。

1. はじめに

今日の高度情報化社会を支える基盤技術の一つとして情報ストレージ技術が挙げられる。1960年代には巨大な磁気テープによる磁気記録技術が情報ストレージ技術の主流であった。その後、種々の材料および要素技術の開発を経て、現在は先端ナノテクノロジー技術を結集させたハードディスクが高密度磁気記録デバイスとして身近なエレクトロニクス商品に浸透しつつある。近年、ハードディスクの面記録密度は長手磁気記録方式を用いて (Fig. 1(a)参照) 年60~80%の割合で増加し、現在100 Gbit/inch² を越える面記録密度を達成している。さらに面記録密度を高めるには情報を記録する磁気記録媒体の磁気クラスター (磁性柱

状結晶粒の集合体) を微細化し、1ビットに相当する磁区 (磁気クラスターが集合して形成する同方向の磁化をもつ領域) の大きさを小さくしなければならない。しかし、磁気クラスターを小さくしすぎると常温でも熱ゆらぎの効果が相対的に増大し超常磁性状態となるため、記録された磁化が反転するという熱減磁現象が発現する。現行の長手方式では隣接した磁区の磁化方向が互に向かい合っているため磁区境界近傍では磁化反転しやすくなり熱減磁現象が顕著となる。これが面記録密度の向上を妨げることとなるので、長手記録方式では200 Gbit/inch² 程度が限界と云われている。

この問題を克服する磁気記録方式として、すでに1970年代に Iwasaki¹⁾によって垂直磁気記録方式が提唱されている (Fig. 1(b)参照)。垂直磁気記録では線記録密度が高くなればなるほど反磁界による影響を減少させることが出来るので、磁区構造が安定化するという利点があり高密度記録に適していると言われている。しかしながら、この画期的な提案も実用となると、記録媒体だけでなく、記録再生磁気ヘッド、トライボロジー技術、信号処理技術などの先端技術の複合的・融合的な開発が不可欠となり、その困難さから実現していなかった。日本では、わが国で発明された技術を実用化しようと産学官の研究機関で研究開発が続けられてきた。昨年12月、発明から約30年を経て東芝が世界に先駆けて垂直記録ハードディスク製品の量産化予

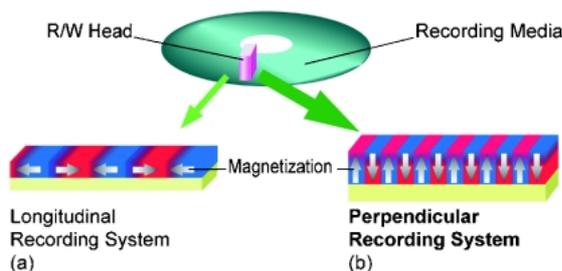


Fig. 1 Image of (a) longitude recording system and (b) perpendicular recording system.

定を宣言し本年6月に発売を開始した。また、本年4月には日立GSTも実用化の予定をプレス発表した。これにより、2005年から2006年にかけて磁気記録方式の移行が進捗し、垂直磁気記録の研究に拍車がかかると予測される。

上述したように次世代の超高密度磁気記録方式が注目されている。垂直磁気記録では、媒体面法線方向に磁化容易軸をもつ垂直磁化膜の開発が必要となる。特に、垂直磁気異方性エネルギーを保持しつつ結晶粒子の高配向化、結晶粒子や磁気クラスターの微細化やグラニューラー化などの微細構造を制御し、飽和磁化 (M_s) や保磁力 (H_c) の大きさを適切化して記録媒体として効果的な垂直磁化膜を開発する研究が進められている。そのような磁気特性は磁化膜全体の特性を示すマクロな量である。マクロな特性は膜を構成する化合物の構成元素ごとのミクロスコピックな性質が複雑に絡みあって発現している。しかしながら、媒体材料開発においてはマクロスコピックな磁気特性の測定や微細構造の解析が主となっており、その基礎となる構成元素ごとのミクロスコピックな性質とマクロスコピックなそれとの相関について着目した研究は進んでいない。

著者らはこの点に着目し、近年、軟X線磁気円二色性吸収分光法により、Co/Pd人工格子多層膜や希土類-遷移金属 (RE-TM) アモルファス合金薄膜などの垂直磁化膜について構成元素ごとに磁氣的性質を評価し、磁性元素の軌道磁気モーメント及びスピン磁気モーメントの大きさとマクロな磁気特性との関係を調べ、それらの知見を材料設計にフィードバックさせて活用しようと試みている。磁性材料の軟X線磁気円二色性吸収分光測定は基礎的な分光研究の観点から長い間研究が行われてきているが、ここでは垂直磁化膜の研究に有用なツールであることを実例を通して紹介する。

2. 軟X線磁気円二色性吸収分光

強磁性体の多くは3d遷移金属、4f希土類金属、あるいはそれらの化合物であり、それらの磁氣的性質の特徴は主として価電子帯と伝導帯の電子構造に由来する。化合物の構成元素が3d遷移金属原子であればその3d電子が、希土類であればその4f電子が主にその磁性の発現を担う。

磁性体の電子状態・スピン状態を光学的手法により調べる研究分野は磁気光学と呼ばれている。赤外～可視～紫外の波長領域におけるファラデー効果や磁気カー効果などの磁気光学効果の研究は基礎から応用に至るまで広範囲にわたって展開され²⁾、バンド間光遷移による偏光特性の変化から磁氣的性質を探る研究手法としてその有用性が認められている。一方、軟X線を光源として用いる場合は、物質を構成する元素の内殻電子状態を始状態とすることができるので、内殻励起磁気光学では始状態の電子状態はほぼ原子準位と等しいと扱える³⁾。すなわち、軌道およびスピン角運動量を明確に指定できるので、終状態となる伝導帯

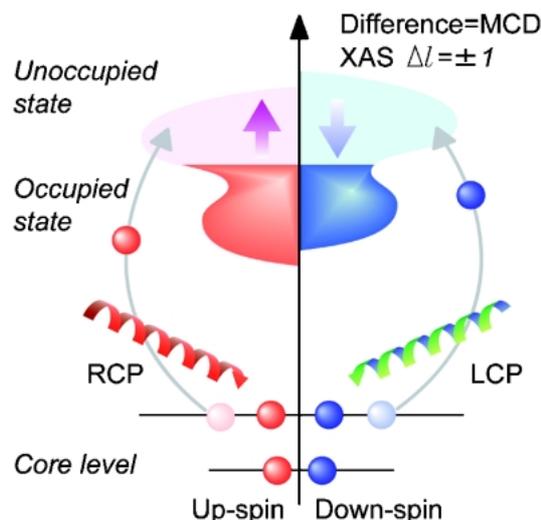


Fig. 2 Schematic view of XAS-MCD process.

の電子状態・スピン状態の知見が直接得られると考えられる。また、内殻電子のエネルギー準位は元素別に軌道ごとに依存して大きく異なるので、合金や多層膜など多元成分系物質でも、その構成元素特有のエネルギー帯を選別して測定を行えば各々の元素の知見を得ることが可能となる。

X線吸収スペクトル (X-ray Absorption Spectrum: XAS) など、内殻電子の励起に伴う光吸収は電気双極子遷移を主としており双極子モーメントの選択則 ($\Delta l = \pm 1$) に従うので、入射光エネルギーを適切に選択することにより、測定の対象となる元素とその軌道を選択した非占有準位の知見を反映する (Fig. 2 参照)。例えば、遷移金属元素の2p内殻電子が選択励起された場合は3d電子状態を反映するスペクトルとなり、希土類元素の3d電子が励起された場合は4f電子状態を反映するそれとなる。

強磁性体の場合、入射光のヘリシティが右円偏光 (RCP) あるいは左円偏光 (LCP) のどちらかに応じて電子の遷移確率は異なる。これが磁気円二色性 (MCD: Magnetic Circular Dichroism) の起源となる。右円偏光吸収スペクトルと左円偏光吸収スペクトルの強度の差は磁気円二色性スペクトルと呼ばれ、磁性体のスピン状態を反映する。円偏光の相対遷移強度を局在モデルに基づいて、XASおよびMCDスペクトルを解析すると1原子あたりの軌道角運動量の期待値 $\langle L_z \rangle$ とスピン角運動量の期待値 $\langle S_z \rangle$ を評価することができる。これらはMCD軌道総和則及びスピン総和則と呼ばれ、1990年代前半にThole及びCarraにより導出された重要かつ有用な法則である^{4,5)}。スピン軌道相互作用が比較的小さく、吸収原子周りの局所対称性が高いという条件のもとでは、3d電子の $\langle S_z \rangle$ の値を評価する際に磁気双極子モーメントの期待値 $\langle T_z \rangle$ を0とすることが妥当となる⁶⁾。その条件下では、軌道磁気モーメント (m_{orb}) は $m_{orb} = -\langle L_z \rangle \mu_B / \hbar$ 、またスピン磁気モーメント (m_{spin}) は $m_{spin} = -\langle S_z \rangle \mu_B / \hbar$ で表

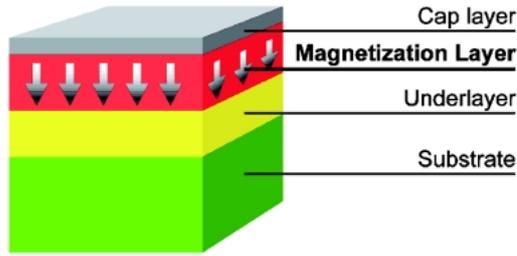


Fig. 3 Schematic representation of the perpendicular film.

されるので、MCD の実験から遷移金属の 3d 電子や希土類の 4f 電子の磁気モーメントに関する知見を得ることができるのである。

3. 測定

3.1 測定試料

本稿では人工格子多層膜やアモルファス合金膜など種類の異なる試料の測定例を紹介する。どの試料とも Fig. 3 に示すように、下地層を形成した Si 基板上にマグネトロンスパッタ法で成膜して作製した^{7,8)}。最表面は酸化防止のため SiN 膜あるいは C 膜を被膜した。とくに、RE-TM 合金薄膜は腐食性が高いという問題があり、実用では保護膜として SiN_x が用いられている。本測定に用いた 5 nm 程度の SiN 膜や C 膜は軟 X 線領域では吸収が小さく、測定に必要な入射光の強度を得ることができる⁹⁾。

人工格子多層膜およびアモルファス合金薄膜は膜厚、組成比、あるいは膜厚比などの変化により、磁化容易軸方向が変化する。測定試料には膜垂直方向に磁化容易軸をもつ垂直磁化膜を選び、すべての試料について磁気ヒステリシスループを振動試料型磁力計 (VSM: Vibrating Sample Magnetometer) で測定し、マクロスコピックな磁気的性質である M_s と H_c を評価した。通常の MCD の測定では、試料に入射させる光の方向と平行に磁場を印加して量子化軸を定める。本研究で測定に用いた全ての試料は膜面垂直方向の角型比 (残留磁束磁化/飽和磁束磁化) が 1 を示す垂直磁化膜であり、外部磁場を試料の膜面垂直方向に一旦印加して飽和磁化状態にさせた後、磁場を除去した残留磁化状態でも一様に垂直方向に磁化された状態が保持される。これを量子化軸とした。

3.2 測定方法

XAS-MCD 測定は試料面に垂直に軟 X 線を入射し、大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL23SU において全電子取量法により室温で行った。全電子取量法は X 線吸収によって光電子またはオージェ電子が放出されることに応じて試料に流れる電流を計測する手法である。このビームラインには APPLE-2 型アンジュレーターが挿入光源として設置されている。この光源を利用した偏光制御

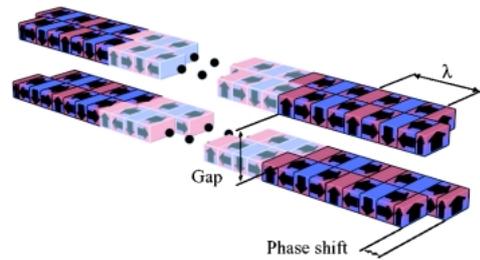


Fig. 4 Magnetic structure of APPLE-2 type undulator. The phase shift and gap distance control the polarization and peak energy. λ is one magnetic period.

式 MCD 測定方法については本誌2001年11月号にすでに紹介したが¹⁰⁾、本稿の内容に合わせてここに簡単に繰り返しておく。APPLE-2 型アンジュレーターは Fig. 4 に示すように上下角 2 列、計 4 列の磁石列があり、この磁石列の位相を制御することで任意の偏光を得ることができる。MCD 測定では、入射光のヘリシティが物質の磁化のどちらかを反転させて二色性を測定する。挿入光源などを用いて偏光を制御できれば試料の磁場環境を変化させずに MCD 測定を行うことが可能となる。本研究で行った試料のように残留磁化を利用して実験を行う場合は磁場印加の必要がないので大変簡易な実験となる。偏光反転と分光器による入射光のエネルギー挿引のタイミングを組み合わせることで制御すれば、測定点の時間間隔を短縮でき、また、分光器の機械的再現性に由来するエネルギーのズレなどを抑制することができる。この長所は、MCD のような同一エネルギーで吸収強度の差分をみるような測定では、スペクトルの精度を向上させるのに非常に有効である。

以上のような偏光制御による MCD 測定は、SPring-8 の他のビームラインにおいてもすでに行われている^{11,12)}。しかし、偏光制御の技術は挿入光源の運用にともなうリングの蓄積電子の軌道の抑制¹³⁾、偏光制御とエネルギー挿引の同期¹⁰⁾など、多くの解決しなければならない課題を伴う。いったん出来上がった実験システムを使うだけならば、大変簡易で便利な測定方法であるが、その定期的稼動にいたるまでには多くの地道な努力があることを申し上げておきたい。

4. 垂直磁化膜の軟 X 線磁気円二色性分光測定

4.1 [Co/Pd]_n 多層膜

磁気記録媒体に求められる性能の指標として磁気クラスターが熱揺らぎに強く、記録ビットが安定であることが挙げられる。磁気記録層の微粒子は粒子間交換相互作用によりクラスター化して磁気クラスターを形成するが、超高密度化を実現するにはこの磁気クラスターを微細化し、かつ熱安定性を保持することが必須となる。垂直磁気記録媒体

Table 1 Lamination number, seedlayers and magnetic property of $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ multilayered films

Film	Lamination number n	Seedlayer: Thickness (nm)	M_s (emu/cm ³)
A	20	C: 5	410
B	20	C: 30	390
C	20	C 60	390
D	20	Si: 5	420
E	20	Si: 30	380
F	20	Si: 100	340
G	20	Pd: 3/Si: 100	360
H	10	Si: 100	250
I	10	Pd: 3/Si: 100	280

の候補として開発されている磁性膜には、CoCrPt系グラニューラー膜¹⁴⁾、FePt規則合金¹⁵⁾、Co/Pd、Co/Pt人工格子膜¹⁶⁾などがある。 $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 人工格子多層膜はナノあるいはオングストロームオーダーの膜厚のCo層とPd層を交互に積層させたものであり、室温で成膜しても強い垂直磁気異方性を示すこと、各膜の膜厚比及び下地層の成膜条件により磁気特性が大きく変化することなどが知られている。さらに $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 多層膜媒体の下地層としてCもしくはSi、Pd/Si複合膜などが検討されており^{7,17)}、透過電子顕微鏡 (TEM: Transmission Electron Microscope) 像の観察などから、下地層が $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 多層膜媒体の膜成長の初期層に大きく影響を与えていること、並びに数ナノメートルの初期劣化層が存在することが明らかとなっている¹⁷⁾。

$[\text{Co}(0.8\text{ nm})/\text{Pd}(0.2\text{ nm})]_n$ 多層膜媒体 ($n=20, 10$) の下地層の種類及び膜厚の異なった試料について、マクロな磁気特性である M_s を測定した結果をTable 1に示す。下地層によって M_s が大きく変化していることが分かる⁹⁾。試料AのC (5 nm) を下地層とした $[\text{Co}/\text{Pd}]_{20}$ 多層膜のCo $L_{2,3}$ 吸収端のXASスペクトルをFig. 5(a)に示す。点線が左右円偏光でそれぞれ測定したデータであり (I_{para} : フォトンヘリシティと磁気モーメントが平行, I_{anti} : フォトンヘリシティが磁気モーメントと反平行), 実線はその平均値を表したものである。そのMCDスペクトルをFig. 5(b)に示す。どちらのスペクトルも L_3 及び L_2 吸収に起因するホワイトライン以外に微細な構造はなく、純金属Coのスペクトルに類似している。XAS-MCDスペクトルの測定はTable 1に示すA~Iの試料について実施したが、どの試料も類似のスペクトルの形状を示し、下地効果によるマクロな磁気特性 (M_s など) の変化から期待されるようなスペクトルの大きな変化は見られなかった⁹⁾。

測定結果を定量的に検討するために、各スペクトルに総和則を適用し各試料についてCoの1原子あたりの $\langle L_z \rangle$ 及び $\langle S_z \rangle$ の値を求めた。どの試料についても $\langle L_z \rangle$ の値はおおよそ $0.2 \mu_B$ 、また $\langle S_z \rangle$ の値はおおよそ $0.4 \mu_B$ となり、

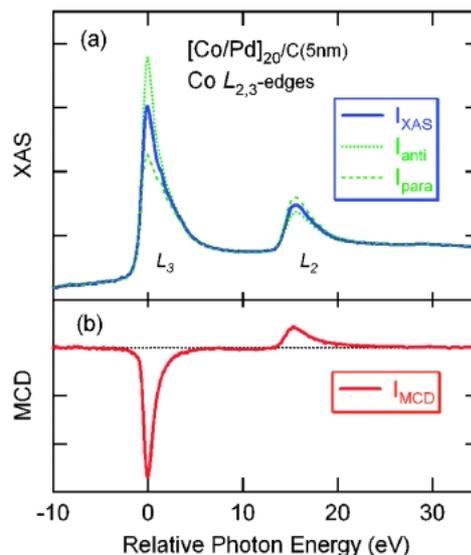


Fig. 5 (a) Co $L_{2,3}$ -edges XAS and (b) MCD spectra of $[\text{Co}/\text{Pd}]_{20}/\text{C}$ (5 nm) film. The energy position of the L_3 peak is set to 0 eV.

ほとんど変化しないことが判った。とくに $\langle S_z \rangle$ の値はマクロな測定から期待される値より小さい。 $\langle S_z \rangle$ の値を算出する際、ここではバルク構造での一般的仮定に従い $\langle T_z \rangle = 0$ としたが、本研究で用いた極薄膜のCo原子すなわち2次元性の強い膜構造においてもその仮定を使用してもよいか議論の余地がある。また、本来非磁性であるPdの4d電子がスピン偏極し磁気モーメントをもっているとも云われている¹⁸⁾。総和則で評価したCoの全磁気モーメントが小さいことと、 $\langle T_z \rangle$ の値やPdの磁気モーメントの大きさとの関係についても今後検討する必要があると考えている。

一方、Coの $L_{2,3}$ 吸収端付近での入射X線の侵入長を考えると、本測定で検出できる試料領域は薄膜の表面数層である。換言すれば、本測定では下地層界面から離れた多層膜上部層のCoの電子・スピン状態を選択的に測定したことになり、軟X線で進入できる深さに存在する多層膜上部層のCoの電子状態は下地層を変えても大きく変化しないことを意味している。TEMの結果と合わせて考えると、下地層を制御して成膜することにより、上部のCo層の電子・スピン状態に影響を与えることなく下地層と $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 層との界面近傍の初期劣化層を制御することができ、それにより多層膜の全体の磁気特性を改善できる可能性を示すことができた⁹⁾。

また、 $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 多層膜媒体の磁気クラスターサイズを微細化する方法としてCo原子層にB原子を添加 ($[\text{CoB}/\text{Pd}]_n$) する方法、および成膜中に N_2 を添加する方法などがある¹⁹⁾。 $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 多層膜の他に、成膜雰囲気中のArに N_2 を添加して $\text{Co}_{80}\text{B}_{20}$ をターゲットとして成膜した $[\text{CoB}/\text{Pd}]_n$ 多層膜媒体の試料についてもCo $L_{2,3}$ 吸収端

XAS-MCD 測定した。N₂ を添加した試料の MCD スペクトルには L₃ ピークに微細な変化がみられ、Co3d は N2p と混成していることが示唆された。総和則を用いて調べた結果、B 及び N とも添加しない場合に比べて、N₂ を添加した試料では $\langle L_z \rangle$ 及び $\langle S_z \rangle$ の値がともに減少していることが分かった²⁰⁾。多層膜の磁気クラスターサイズを制御するという同じ目的を持っていても、下地層の効果と成膜中の効果では、電子・スピン状態への影響はミクロスコピックにみるとその働きが大きく異なることが分かる。

4.2 希土類-遷移金属アモルファス合金膜

垂直磁気記録媒体の候補として、アモルファス薄膜系磁性材料の RE-TM アモルファス合金膜があげられる²¹⁾。RE-TM アモルファス合金は、比較的均一かつ大面積の成膜が可能であり、また組成の制御が容易であるなど材料設計の点でも有利な特色をもつ。日常生活においても、RE-TM アモルファス合金は永久磁石材料として広く用いられているが、とくに、記録ビットの熱揺らぎ耐性にも優れていることから光磁気記録媒体 (MO) の低ノイズ媒体として実用に供されている。例えば、強い垂直磁気異方性を示す TbFeCo 系や DyCo 系のアモルファス合金膜が MO 媒体に用いられている。

一般に、RE-TM アモルファス合金膜の構成原子である RE 原子および TM 原子ともに磁性原子であり、TM 原子の磁気モーメントは同じ方向を向いているのに対して、RE 原子の磁気モーメントは各々異なった方向を向いている。さらに、RE 原子が重希土類 (Tb, Dy など) の時には、RE 原子に由来する磁化を合成した方向は Fig. 6(a) に示すように、全体として TM 原子の磁化の方向と反平行に引きフェリ磁性的配列が形成されると云われている。(それに対して、軽希土類 (Nd, Sm など) の場合は、TM 原子とフェロ磁性的配列を形成すると云われている。) さらに、重希土類の磁気モーメントの分布は、Fig. 6(b) に模式図で示すような、円錐状になりスベリ磁性という磁気構造をとると云われている²²⁾。RE-TM アモルファス合金膜はある組成比を選べば垂直磁気異方性を示す薄膜も容易に作製できる。最近、RE-TM アモルファス合金系の強い垂直磁気異方性の特性を活かして RE-TM アモルファス合金膜を垂直磁気記録媒体に応用することが試みられている。記録媒体として用いるためには材料の有している磁気異方性を最大限に引き出すことが必要であり、そのためにはその起源と大きさを理解することは重要である。しかし、RE-TM アモルファス合金膜の垂直磁化の発現機構が完全に理解されている状況ではなく、ミクロスコピックな基礎物性とマクロスコピックな磁気的性質の関係を調べる研究の必要性は高い。我々は TbFeCo 系と DyCo 系アモルファス合金膜を用いた軟 X 線 MCD の実験を端緒として研究を展開することにした。

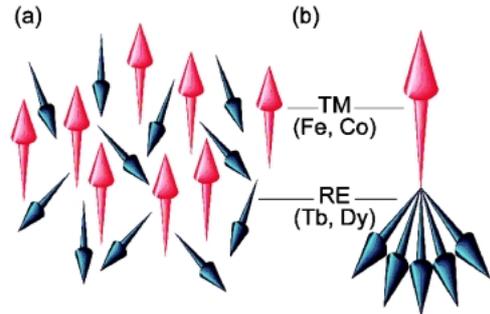


Fig. 6 Magnetic structure of RE-TM amorphous alloy.

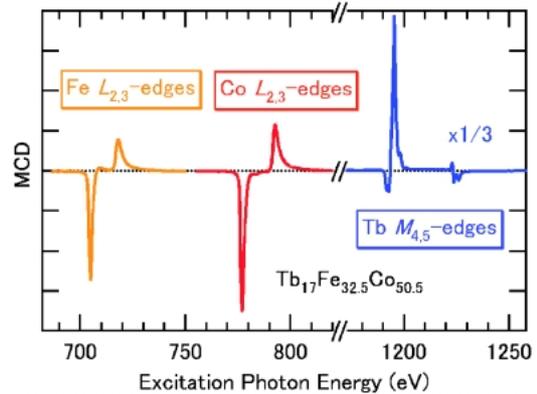


Fig. 7 MCD spectra of Tb₁₇Fe_{32.5}Co_{50.5}.

4.2.1 Tb₁₇Fe_{32.5}Co_{50.5} アモルファス合金膜

RE-TM アモルファス合金膜の電子状態の研究に、MCD 測定のもつ元素選択性が有用であることを示す一例として、Cr (20 nm) を下地層として成膜した垂直磁化をもつ Tb₁₇Fe_{32.5}Co_{50.5} アモルファス合金膜 (25 nm) の Co の L_{2,3}, Fe の L_{2,3} 及び Tb の M_{4,5} 吸収端のそれぞれの MCD スペクトルを Fig. 7 に示す⁸⁾。スペクトルから TM の Fe, Co の MCD のピークは同じ方向を向いており Fe と Co の磁化がフェロ的秩序を示すことが分かる。また、Tb のピークはそれらに対して反対方向に向いており、膜全体としてはフェリ的秩序を形成していることが示された。さらに、Tb のピーク強度は Fe や Co のそれと比べて大きく、薄膜全体の磁気モーメントに Tb の 4f 電子が大きく寄与していることが定性的にわかる。膜全体の磁気特性を測定する VSM によるマクロスコピックな磁化測定法とは異なり、構成元素固有の内殻電子準位を選択して MCD 測定を行うことにより、多元系化合物であっても元素別の電子・スピン状態を抽出して観測できることが分かる。

4.2.2 Dy_xCo_{100-x} アモルファス合金膜

RE-TM アモルファス合金膜の磁気構造の議論を単純にするために、2 元系の Dy_xCo_{100-x} アモルファス合金膜の実験を行った。この合金もその組成により磁気特性は大きく

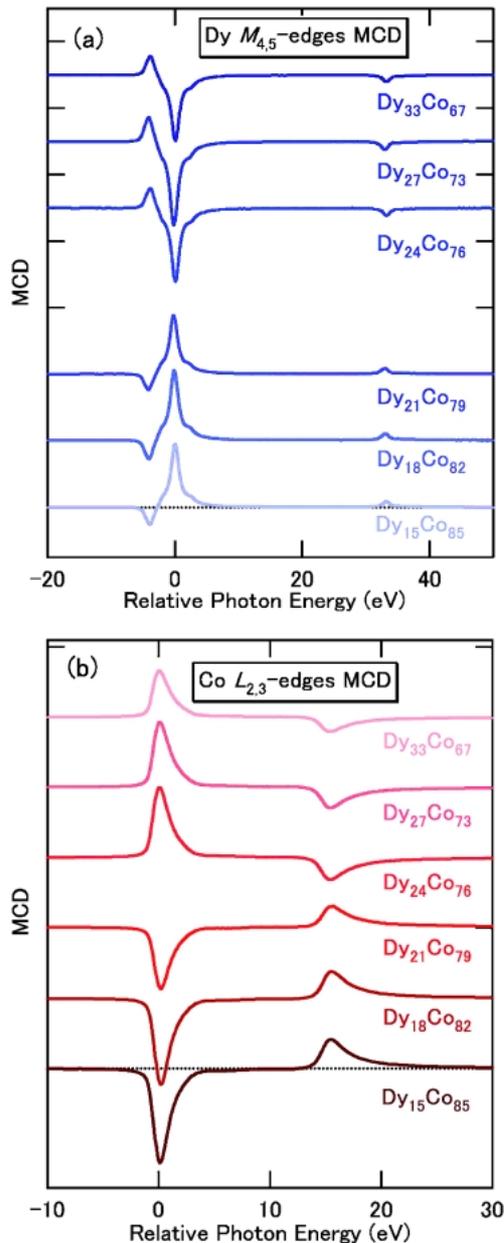


Fig. 8 (a) Dy $M_{4,5}$ - and (b) Co $L_{2,3}$ -edges MCD spectra of Dy_xCo_{100-x} . The energy positions of L_3 and M_5 peaks are set to 0 eV.

変化し、 $x = 15 \sim 33$ 近傍では垂直磁化を示す。とくに M_5 は $x = 22$ 付近で極小を持つことが知られている。Fig. 8 に組成の異なる Dy_xCo_{100-x} 膜の Dy の $M_{4,5}$ 及び Co の $L_{2,3}$ 吸収端の MCD スペクトルをそれぞれ示す。Dy の $4f$ 電子と Co の $3d$ 電子の磁気モーメントが反強磁性的に配列しており、補償組成 ($M_s = 0$ となる組成) の前後で ($x = 21 \sim 24$) 優勢モーメントが Co の $3d$ 電子から Dy の $4f$ 電子に入れ代わっている様子がわかる²³⁾。

Dy が理想的な Dy^{3+} イオン状態で基底状態が ${}^6H_{15/2}$ であると仮定して多重項モデルで計算した MCD スペクトルを Fig. 9 に示す²³⁾。アトミックモデル²⁴⁾から計算されたスペクトルは、実験で観測されたスペクトルと定性的に形状

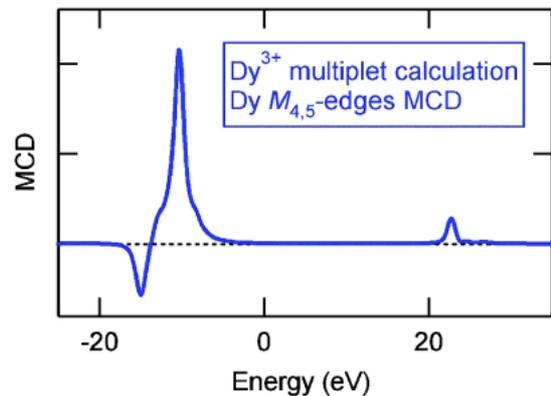


Fig. 9 MCD spectra of Dy^{3+} ion, which are deduced from the full-multiplet model calculation.

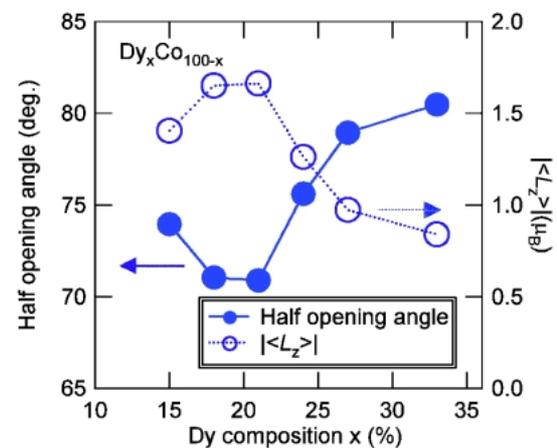


Fig. 10 The absolute value of $\langle L_z \rangle$ (open circle) and half opening angle (solid circle) of Dy $4f$ orbital moment as a function of dysprosium concentration.

がよく一致し、Dy の $4f$ 電子が固体中で強く局在していることを支持しているといえる。このモデルでは磁気モーメントが完全に面垂直方向に整列しているとして、理論スペクトルに総和則を適用すると $\langle L_z \rangle = 5.1 \mu_B$ と計算される²³⁾。

一方、実験スペクトルに総和則を適用し Dy の $4f$ 電子の $\langle L_z \rangle$ の値を見積もった結果を、絶対値を用いて Fig. 10 に白丸で示す。組成に依存して $|\langle L_z \rangle|$ が大きく変わっているのが分かる。これらの値はモデル計算から算出した値よりも小さくなっている。そこで RE-TM アモルファス合金中で、RE 元素の磁気モーメントが Fig. 6 (b) のようにコーン状に分布しており、実効的には、この磁気モーメントの面垂直に射影された成分が MCD で観測されていると考えてみる²⁵⁾。つまり、MCD 測定では入射光に対して射影された磁化の成分のみがスペクトルに反映されることを考え合わせると、Dy の $4f$ 電子の磁気モーメントが円錐状に広がっているために予想された値より小さくなったとみなすことができる。その仮定を利用し Dy の $4f$ 電子の

モーメントの円錐状の広がり角を算出した値を Fig. 10 に青丸でプロットした。広がり角の組成依存性と M_s の組成比依存性を比較してみると、DyCo アモルファス合金膜のスペリ磁性のマクロな磁気特性には、Dy の 4f 電子の磁気モーメントの広がり角が大きく寄与していると考えられる²⁶⁾。今後、他の RE-TM アモルファス合金膜の MCD による研究を進め統一した議論をしたい。

5. おわりに

以上、軟 X 線磁気円二色性分光で観た垂直磁化膜の研究の一端を紹介した。ここでは詳解しないが、Co/Pd 人工格子多層膜と TbCo アモルファス合金膜を複合させた [TbCo/Pd]_n 多層膜の研究にも着手し²⁷⁾、人工格子多層膜特有の性質と RE-TM アモルファス合金膜の性質をよく反映した結果が得られている。軟 X 線磁気円二色性を用いた磁性研究は人工格子多層膜あるいは複数の組成を持つ化合物であっても、元素別にその磁気特性を調べる手段として格段の有用性を示す。軟 X 線磁気円二色性分光測定による研究が、優れた特性をもつ垂直磁化膜の材料研究につながるように今後の研究を進めたい。

謝辞

本研究は主に早稲田大学の川治純博士、佐山淳一氏、田中真人博士、逢坂哲彌教授、富士通研究所の松本幸治博士、森河剛博士、JASRI の松下智裕博士、信州大学の三浦義正教授との共同研究で行った。また、挿入光源の引き起こす軌道変動の抑制について、JASRI の田中均博士、高雄勝博士、日本原子力研究所の吉越章隆博士、中谷健博士をはじめとする多くの方々にご尽力いただいたことに感謝する。実験の一部は SPring-8 共同利用2002B0642及び2004A0511の成果である。また、住友財団基礎科学研究助成、文部科学省21世紀 COE「実践的ナノ化学」プロジェクト及び文部科学省科学技術振興調整費先導的研究等の推進「ナノ界面制御による磁気記録材料の創製」プロジェクトの助成に感謝する。

参考文献

- 1) S. Iwasaki: IEEE Trans. Magn. MAG-15, 71 (1980); S. Iwasaki: IEEE Trans. Magn. 38, 1609 (2002); S. Iwasaki: IEEE Trans. Magn. 39, 1868 (2003).
- 2) 佐藤勝昭: 光と磁気 [改訂版] (朝倉書店'2001年).
- 3) 例えば、小出常晴: 応用物理 63, 1210 (1994); 菅野暁、藤森 淳、吉田博編: 新しい放射光の科学 (講談社サイエンティフィック, 2000年) pp. 80-111.
- 4) B. Thole, P. Carra, F. Sette and G. van der Laan: Phys. Rev. Lett. 68, 1943 (1992).
- 5) P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli and X. Wang: Phys. Rev. Lett. 70, 694 (1993).
- 6) J. Stöhr and H. Köning: Phys. Rev. Lett. 75, 3748 (1995).
- 7) T. Onoue, T. Asahi, K. Kuramachi, J. Kawaji, T. Osaka, J. Ariake, K. Ouchi, G. Safran and N. Yaguchi: J. Appl. Phys. 92, 4545 (2002).
- 8) A. Agui, M. Mizumaki, T. Asahi, J. Sayama, K. Matsumoto, T. Morikawa, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Osaka and Y. Miura: Trans. Magn. Soc. Jpn. 4, 326 (2004).
- 9) A. Agui, M. Mizumaki, T. Matsushita, T. Asahi, J. Kawaji, J. Sayama and T. Osaka: J. Appl. Phys. 95, 7825 (2004).
- 10) 安居院あかね, 吉越章隆, 中谷 健, 松下智裕, 齋藤祐児, 水牧仁一郎, 横谷明徳, 田中 均, 宮原義一, 島田太平, 竹内政雄, 高雄 勝, 佐々木茂樹, 青柳秀樹, 工藤統吾, 佐藤一道, 呉樹奎, 大熊春夫: 放射光 14, 17 (2001); A. Agui, A. Yoshigoe, T. Nakatani, T. Matsushita, Y. Saitoh, A. Yokoya, H. Tanaka, Y. Miyahara, T. Shimada, M. Takeuchi, T. Bizen, S. Sasaki, M. Takao, H. Aoyagi, T. P. Kudo, K. Satoh, S. Wu, Y. Hiramatsu and H. Ohkuma: Rev. Sci. Inst. 72, 3191 (2001).
- 11) 鈴木基寛: 放射光 13, 12 (2000); M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa: Jpn. J. Appl. Phys. 37, L1488 (1998); M. Suzuki, N. Kawarura, M. Muzumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa: J. Synchrotron. Rad. 6, 190 (1999).
- 12) 室隆桂之: 放射光 本号 (2005); T. Muro, Y. Saitoh, H. Kimura, T. Matsushita, T. Nakatani, M. Takeuchi, T. Hiro-no, T. Kudo, T. Nakamura, T. Wakita, K. Kobayashi, T. Hara, K. Shirasawa and H. Kitamura: AIP Conference Proceedings 705, 1052 (2004); T. Muro, T. Nakamura, T. Matsushita, H. Kimura, T. Nakatani, T. Hirono, T. Kudo, K. Kobayashi, Y. Saitoh, M. Takeuchi, T. Hara, K. Shiraawa and H. Kitamura: J. Electron Spectroscopy & Related Phenomena, 144-147, 1101 (2005).
- 13) T. Nakatani, A. Agui, H. Aoyagi, T. Matsushita, M. Takao, M. Takeuchi, A. Yoshigoe and H. Tanaka: Rev. Sci. Instrum. 76, 055105 (2005).
- 14) T. Shimatsu, H. Sato, T. Oikawa, Y. Inaba, O. Kitakami, S. Okamoto, H. Aoi, H. Muraoka and Y. Nakamura: IEEE Tans. Magn. 40, 2483 (2004).
- 15) T. Suzuki, H. Muraoka, Y. Nakamura and K. Ouchi: IEEE Trans. Magn. 39, 691 (2003).
- 16) S. Matsunuma, A. Yano, E. Fujita, T. Onuma, T. Takayama and N. Ota: J. Appl. Phys. 91, 8073 (2002).
- 17) J. Kawaji, H. Hashimoto, T. Asahi, J. Hokkyo and T. Osaka: Trans. Magn. Soc. Jpn. 4, 78 (2004).
- 18) Y. Tosaka, H. Ikekame, K. Urigo, S. Kurosawa, K. Kato and S. C. Shin: 日本応用磁気学会誌 18, 389 (1994) (in English).
- 19) J. Sayama, M. Tanaka, J. Kawaji, T. Asahi, S. Matsunuma and T. Osaka: Trans Mat. Res. Soc. Jpn. 28, 1165 (2003).
- 20) T. Asahi, J. Sayama, J. Kawaji, M. Tanaka, A. Agui, M. Mizumaki, T. Matsushita and T. Osaka: The 7th Perpendicular Magnetic Recording Conference, 31pB-12 (Sendai, Japan, 2004).
- 21) 未踏科学技術協会, レアメタル研究会編: 光磁気ディスク材料 (工業調査会, 1993年).
- 22) P. Chaudhari, J. J. Cuomo and R. J. Garbino: Appl. Phys. Lett. 22, 337 (1973).
- 23) A. Agui, M. Mizumaki, T. Asahi, K. Matsumoto, J. Sayama, T. Morikawa, T. Matsushita, T. Osaka and Y. Miura: J. Alloys Comp. 印刷中.
- 24) T. Jo and S. Imada: J. Phys. Soc. Jpn. 67, 3617 (1998).
- 25) M. Mizumaki, *et al.*: Magnetic Optical Recording International Symposium 2004, Mo-B-3 (Yokohama, Japan, 2004).
- 26) A. Agui, *et al.*: 投稿準備中.
- 27) T. Asahi, J. Sayama, M. Tanaka and T. Osaka: The 7th Perpendicular Magnetic Recording Conference, 31pB-10 (Sendai, Japan, 2004).

● 著者紹介 ●

安居院あかね

特殊法人 日本原子力研究所関西研究所放射光科学研究センター

E-mail: agui@spring8.or.jp

専門：光物性，磁気光学

【略歴】

1996年東京大学大学院工学系研究科博士課程（後期）修了，1996年日本学術振興会博士特別研究員，1997年ウブサラ大学理学部ポストドクタフェロー，1999年日本原子力研究所関西研究所研究員，現在に至る。

水牧仁一朗

財団法人 高輝度光科学研究センター

E-mail: mizumaki@spring8.or.jp

専門：磁性物理学，X線分光

【略歴】

1997年東京大学大学院工学系研究科博士課程（後期）修了，1997年高輝度光科学研究センター協力研究員，1998年同センター利用促進研究部門Ⅰ研究員，2000年同センター副主幹研究員，現在に至る。

朝日 透

早稲田大学 生命医療工学研究所

E-mail: asahi@mse.waseda.ac.jp

専門：キラル科学，磁気化学

【略歴】

1988年早稲田大学大学院修士課程修了，1990年同大学理工学部助手，1992年博士早稲田大学，1993年日本学術振興会博士特別研究員，1995年早稲田大学各務記念材料技術研究所助手，1997年同大学各務記念材料技術研究所助教授，同大学理工学総合研究センター助教授を経て，2003年同大学大学院理工学研究科助教授，2004年同大学生命医療工学研究所教授，同大学大学院理工学研究科教授（兼任），現在に至る。

Investigation of perpendicular magnetic films by means of soft X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy

Akane AGUI

Synchrotron Radiation Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute, 1-1-1 Kouto, Mikazuki-cho, Sayo-gun 679-5148, Japan

Masaichiro MIZUMAKI

Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1 Kouto, Mikazuki-cho, Sayo-gun 679-5198, Japan

Toru ASAHI

Consolidated Research Institute for Advanced Science and Medical Care, Waseda University, 513 Wasedatsurumaki-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 162-0041, Japan

Abstract Nowadays, the magnetic data storage technology is supporting our highly information-oriented society. High storage packing-densities in hard disk drives (HDD) have been desired since the invention and remarkable progress has been made. After the perpendicular recording technology was proposed about 30 years ago, intensive studies have been made to realize this concept all over the world. Very recently, in December, 2004, the first HDD system based on perpendicular recording was announced to start mass production in Japan. There are many candidate materials for perpendicular magnetic recording media. In this review, the investigation of perpendicular magnetization films such as multilayered films of and rare-earth transition metal amorphous films are introduced. The measurements were performed by soft X-ray absorption and magnetic circular dichroism spectroscopy (XAS-MCD), which gave us information on the unoccupied electronic and spin states of individual elements in the materials. It is shown that XAS-MCD spectroscopy is a useful experimental method to study the perpendicular magnetization films.