

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04658

研究課題名(和文)角型比が高い垂直磁化膜の磁化反転における前駆現象の解明

研究課題名(英文) Study of magnetization switching process of perpendicular magnetization film with high squareness ratio

研究代表者

安居院 あかね (AGUI, Akane)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 放射光科学研究センター・首席研究員(定常)

研究者番号：20360406

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：希土類-遷移金属アモルファス合金膜は、磁気記録材料の母物質として知られている系である。本研究では主に Tb_xCo_{100-x} 膜について、全磁化曲線測定及び磁気コンプトン散乱測定から算出した、スピン選択、軌道選択、元素選択の磁化曲線の測定を行った。磁気補償組成を境界として、スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントあるいは Tb 磁気モーメントと Co 磁気モーメント向きが逆転する様子が観察された。本研究で用いた系は希土類である Tb の $4f$ 軌道が支配的であり、スピン軌道相互作用が大きい系であるため、スピンと軌道の比、 Tb と Co の比がほぼ一定でVan Vleckの異方的交換相互作用の理論と一致した。

研究成果の概要(英文)：A rare earth-transition metal amorphous alloy film is a system known as a material of a magnetic recording material. In this study, the spin and orbital specified magnetization curves, and as well as, element specified magnetization curves of Tb_xCo_{100-x} films were measured by combing total magnetization curve measurement and magnetic Compton scattering measurement. The spin magnetic moment, the orbital magnetic moment, the Tb magnetic moment and the Co magnetic moment direction are reversed with the magnetic compensation composition around $x=17$. Since the $4f$ orbital of rare earth Tb is dominant and the system with large spin orbital interaction is used in the system used in this study, the ratio of spin to orbit, the ratio of Tb and Co is nearly constant. It is consistent with the theory of rectangular exchange interaction.

研究分野：分光物性

キーワード：コンプトン散乱 垂直磁化膜 磁化過程

1. 研究開始当初の背景

希土類-遷移金属(RE-TM)アモルファス合金膜は、磁気記録材料の母物質として知られている。構成要素のREとTMは共に磁性元素であり、その種類及び組成比により膜の磁気的性質が大きく変化する。アモルファスTbCoFeは組成比と成膜条件により、垂直磁気異方性をもつ。とくに1980年代から90年代にかけて光磁気ディスクの材料として用いられた。近年は磁気トンネル接合に垂直磁気異方性を有するRE-TMアモルファス薄膜相を加え磁気スイッチングを制御する研究も提案されている。超高密度記録材料研究分野では垂直磁化膜の実用化が進み磁気ディスクの大容量化が進んでいる。磁気記録の高密度化には高速書き込み読み出し技術が伴わねばならない。

一般に、磁気特性の評価の手段としてVSM(試料振動型磁力計)やSQUID(超伝導量子干渉素子)などの全磁化の測定が用いられている。これは系全体のマクロスコピックな磁化反転に関する情報であり、ミクロスコピックな磁化反転挙動そのもの詳細な研究は殆ど手つかずに残っている。

従来、磁気材料の磁気特性評価には、全磁気モーメントの測定などマクロスコピックな磁性を対象としている。マクロスコピックな磁気的性質は、スピン磁気モーメント、軌道磁気モーメントといった量子力学的に発現する磁気的性質が絡み合って発現しており、磁性体の磁場応答の起源を解明するには、ミクロスコピックな性質に着目した測定が有効であると考えた。

コンプトン散乱は光に電子による散乱であり、この過程で系の運動量とエネルギーが保存則される。コンプトン散乱X線のエネルギースペクトルから求めた物質中の電子運動量分布は、コンプトンプロファイルとよばれる。コンプトンプロファイルは電子運動量密度の一次元投影像であり、すなわち運動量空間の電子密度である。さらに、円偏光X線を用いて磁性体のコンプトン散乱を測定すると、その円偏光依存性から電子スピンの依存した磁気コンプトン散乱を測定できる。磁気コンプトン散乱から求めた電子スピンの依存する電子運動量分布は磁気コンプトンプロファイルとよばれる。

磁気コンプトンプロファイルは、磁性電子のみの運動量分布を反映し、その積分強度から磁性電子のスピン磁気モーメントの情報を得ることが出来る。我々は、これまでに磁気コンプトン散乱強度の印加磁場依存性を利用した全スピン選択磁化曲線の測定を実現した(Agui et al., J. Synchrotron Rad. 17 (2010) 321. この研究は磁性体の新しい磁化測定の提案として評価されICUrのリサーチハイライトとして紹介された。)

全磁気モーメント(μ_t)がスピン磁気モーメント(μ_s)と軌道磁気モーメント(μ_L)の和($\mu_t = \mu_s + \mu_L$)からなると考えると、全磁化曲線

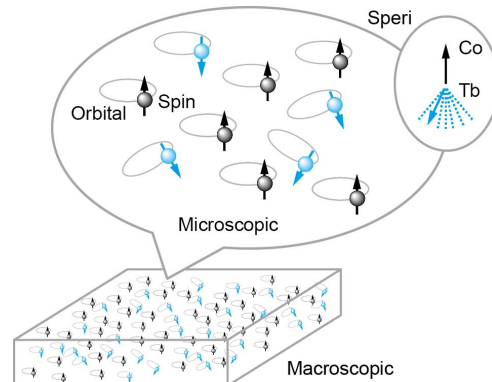


図1: スペリ磁性 (Agui et al. 放射光 29 (2016) 64.).

と全スピン磁気モーメント選択磁化曲線を測定できれば、全軌道磁気モーメント選択磁化曲線を算出できる。さらに、データ解析により、元素別にスピンの寄与を算出できる。また、磁気コンプトン散乱測定と全磁化測定を組み合わせ、スピン、軌道、元素別の磁化曲線を測定する方法を提案している (Agui et al., APEX 4 (2011) 83003; JAP, 114, 183904 (2013) 等、この手法は日刊工業新聞等で取り上げられた。)。新たに開発したこの手法を利用すれば、磁化膜の磁気反転挙動をミクロスコピックに観測できると着想した。

2. 研究の目的

RE-TMはRE元素の磁気モーメントは円錐状にランダムに分布し、TM磁気モーメントとフェリ的になった、スペリ磁性と呼ばれる磁気構造をもつ(図1)。

これまで我々は常磁性成分をもつRE-TM膜において磁気コンプトン散乱の印加磁場依存性の測定を行い、低磁場ではスピン成分が磁場によく応答するが、高い磁場ではスピン成分と軌道成分の振る舞いが拮抗することを見出していた。

本研究では、高密度記録材料に近い、角型比の高いRE-TM垂直磁化膜について全磁化の磁化反転過程に内在するミクロスコピックな挙動を調べる。

角型比の高いRE-TM膜の全磁化曲線は磁化が急激に反転する直前まで磁化は一定であるが、ある磁場でわずかに磁化が変化すると一斉に磁化反転が起こっている。このような振る舞いは、磁化の動力学モデル解析から、磁化反転の核発生により引き起こされていると考えられてきた。一斉磁化反転が起こる臨界磁場近傍ではミクロな成分の寄与が拮抗している。全磁化成分はRE、TMそれぞれのスピン、軌道成分からなり、特にスピン磁気モーメントはTMが、軌道磁気モーメントはREが支配的と言われている。

特に、磁化反転の開始の前後のスピン成分、軌道成分、元素成分別の磁場応答挙動を詳細に観察し磁化反転機構の解明を試みる。

磁化反転のトリガーとなる成分は、磁気記

録の書き込み読み出しの際に磁場に最も敏感に応答する成分そのものである。本研究における RE-TM 垂直磁化膜の磁化過程の解明は、磁気記録の高速化に繋がる特性の良い記録媒体材料の開発に指針を与えると考えている。

3. 研究の方法

本研究では、RE-TM 垂直磁化膜のミクロスコピックな磁化過程を観測し、磁化反転機構を解明する。磁化のミクロスコピックな磁化反転挙動は磁気コンプトン散乱、磁気円二色性吸収の磁場依存性を用いて測定する。

RE-TM 膜は、膜であることから試料ボリュームが小さい上、フェリ磁性であるため RE と TM の磁化成分が打ち消し合い信号が弱くなる。このため磁気コンプトン散乱測定には高輝度光源が必須である。コンプトン散乱測定は世界でも大型放射光施設 SPring-8 の BL08W でしか行えないのでこれを利用した。SPring-8・BL08W の磁気コンプトン散乱測定装置では超電導マグネットにより、試料に -2.5T ~ 2.5T の任意の磁場を印加できる。入射光は 183 keV の(楕)円偏光 X 線とし、散乱 X 線は散乱角 178 度に配置した Ge 半導体検出器を用いて検出した。

磁気円二色性吸収測定は KEK-PF の BL7 及び BL16 で測定した。

RE-TM 膜は磁気記録材料の母物質としては Tb-Co-Fe などの 3 元素系が主流であるが、本研究はモデルの単純化のため Tb-Co の 2 元素系を対象とする。磁化反転機構の統一的理解のため、角型比の高い試料について補償組成を挟んで Tb チップと Co チップをターゲットしたスパッタリングにより成膜したものを試料とした。典型的な試料構成はカプトン膜もしくは Al 箔を下地とし、Al をバッファ層とし、Tb-Co を 1000 nm 成膜し、酸化防止のため Al をキャップ層とした。全磁化曲線は SQUID 磁力計で測定した。

4. 研究成果

ここでは主に、Tb-Co 膜は保障組成を挟む、 Tb_xCo_{100-x} ($13 < x < 20$) 膜について、全磁化曲線測定及び磁気コンプトン散乱測定から算出した、スピン選択、軌道選択、元素選択の磁化曲線の測定を行った室温での結果を報告する (Agui et al., MRX 4 (2017) 106108.)。

図 2 に測定から得られた全磁化曲線を示す。 $x=18$ で保持力が一番大きい。また、図 3 で測定から得られた磁気コンプトン散乱プロファイルを示す。2-3 au の領域の磁気コンプトンプロファイルが、 $x < 14$ の領域では上を向き、 $18 < x$ では下を向いている。つまり、図 3 から $x=14$ と $x=18$ の間で、磁気コンプトンプロファイルの向きが変わっていることがわかる。この間に磁気保障組成がある。詳しい解析の結果 $x=17$ 近傍に保障組成があることがわかった。

また、図 3 中の と は、モデルプロファ

イルのフィッティングを用い、Tb 成分、Co 成分に分離した元素別の磁気コンプトンプロファイルを示す。フィッティング範囲は典型的には 2au ~ 10au とした。Tb と Co の磁気モーメントは逆を向いている。これは図 1 のスperi 磁性の構造をよく表している。また $x=14$ と $x=18$ の間で Tb 成分と Co 成分の向きが入れ替わっており、磁気コンプトンプロファイルの向きの変化は、Tb と Co 優勢磁気モーメントの入れ替わりによっていることが磁気コンプトンプロファイル測定によりよく示されている。

図 4 に印加磁場を変えて測定した磁気コンプトンプロファイルの積分強度から算出した、スピン選択磁化曲線を で示す。これと全磁化曲線の差分として算出した軌道選択磁化曲線 O で示す。この系においては、 $x < 14$ ではスピン成分の磁化曲線が全磁化の磁化曲線と同じ方向を向き、 $18 < x$ では逆になっている。この時それぞれの試料において、スピン成分と軌道成分の大きさの比は(図は省略)磁場変化に対してほぼ一定である。これはスピン成分と軌道成分が磁場変化に対して協同的に変化していることを示すと考えられる。

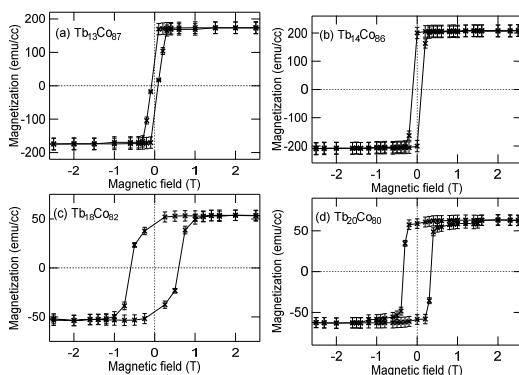


図 2: 全磁化曲線 (a)Tb₁₃Co₈₇, (b)Tb₁₄Co₈₆, (c) Tb₁₈Co₈₂, (d)Tb₂₀Co₈₀.

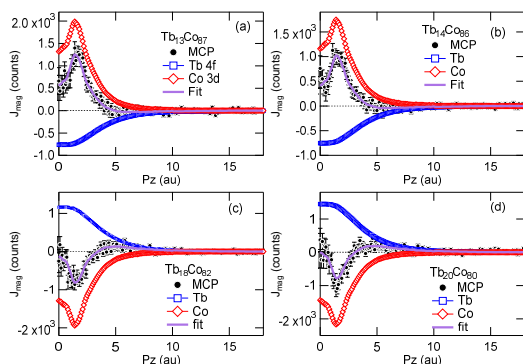


図 3: 2.5T の磁気コンプトン散乱プロファイル。 : 測定された磁気コンプトンプロファイル, :Tb 成分、 :Co 成分、 -: フィッティングから得られた磁気コンプトンプロファイル。(a)Tb₁₃Co₈₇, (b)Tb₁₄Co₈₆, (c) Tb₁₈Co₈₂, (d)Tb₂₀Co₈₀.

図3に示したように、磁気コンプトンプロファイルの形状はモデルフィッティングを使ってTb成分とCo成分に分離できる。その結果を使い、Tbのスピ成分とCoのスピ成分に分離した元素選択磁化曲線を図5に示す。それぞれ、とで示している。フィッティングは2 au以上の領域で行っており、この残差は遍歴電子から由来する成分と考えることができる。図5でxで示すのがこの成分である。この成分は全体の中では小さな値である。

図4と図5を比べると、図5のCoのスピ成分は、図4の全スピ成分と同じ向きを向いているが、Tbのスピ成分は全スピとは逆を向き、軌道成分と同じ向きを向いていることが分かった。Coがもつ磁氣的に活性な電子は3d軌道の電子であり、その磁気モーメントの主成分はスピ磁気モーメントである。Coの磁気モーメントは全体として全磁化と同じ向きになっている。これに対し、Tbのスピ成分が全磁化と逆になっていることは、スペリ磁性の構造からも理解される。また、Tbの磁気モーメントを主に担うのは4f軌道で電子である。アトムックモデルでは、全磁気モーメントの1/3を軌道磁気モ

ーメントが担う。Tbのスピ成分と軌道成分が角度を持ちながらも同じ方向を向いていることから、図4の軌道成分磁化曲線の振る舞いはTbの4f電子が支配していると考えられる。さらに、図5のそれぞれの元素別磁化曲線比は(図は省略)磁場に対してほぼ一定である。磁化反転においてTbとCoの持つ磁気モーメントは協同的に振舞っていると考えられる。

本研究で用いた系は希土類であるTbの4f軌道が支配的であり、スピ軌道相互作用が大きい系であるため、スピと軌道の比、TbとCoの比がほぼ一定であることはVan Vleckの異方的交換相互作用の理論と一致する。

本研究では、コンプトン散乱の温度変化依存性測定や磁気円二色吸収測定も行っている。まだ考察が済んでいない部分もあるが、全体とし体系的な結果を得ていると考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計6件)

Magnetic Compton profile evaluation of magnetization process of Tb_xCo_{100-x} films Akane Agui, Chuang Ma, Xiaoxi Liu, Naruki Tsuji, Misaki Adachi, Akane Shibayama, Kosuke Suzuki and Hiroshi Sakurai, Materials Research Express 4 (2017) 106108, <https://doi.org/10.1088/2053-1591/aa91e3>

Glassy distribution of $Bi^{3+}Bi^{5+}$ in $Bi_{1-x}Pb_xNiO_3$ and negative thermal expansion induced by intermetallic charge transfer, Kiho Nakano, Kengo Oka, Tetsu Watanuki Masaichiro Mizumaki, Akihiko Machida, Akane Agui, Hyunjeong Kim, Jun Komiyama, Takashi Mizokawa, Takumi Nishikubo, Yuichiro Hattori, Shigenori Ueda, Yuki Sakai, Masaki Azuma, Chemistry of Materials 2016, 28 (17), pp 6062–6067, DOI: 10.1021/acs.chemmater.6b01160

The study of the magnetization process of Fe film by magnetic Compton scattering and Mössbauer spectroscopy, Akane Agui, Ryo Masuda, Yasuhiro Kobayashi, Tadashi Kato, Shun Emoto, Kosuke Suzuki, and Hiroshi Sakurai, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 408 (2016) 41–45. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2016.02.016>

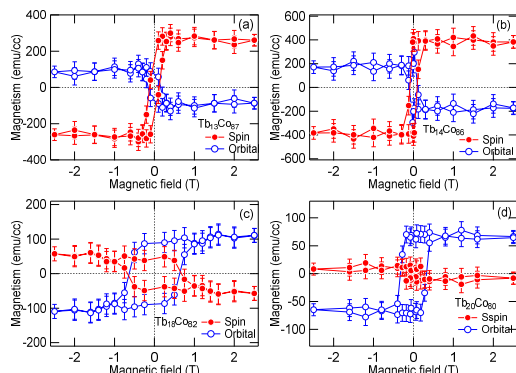


図4: 磁気コンプトン散乱プロファイルの印加磁場依存性から得られたスピ選択(■)及び軌道選択(○)磁化曲線。(a) $Tb_{13}Co_{87}$, (b) $Tb_{14}Co_{86}$, (c) $Tb_{18}Co_{82}$, (d) $Tb_{20}Co_{80}$.

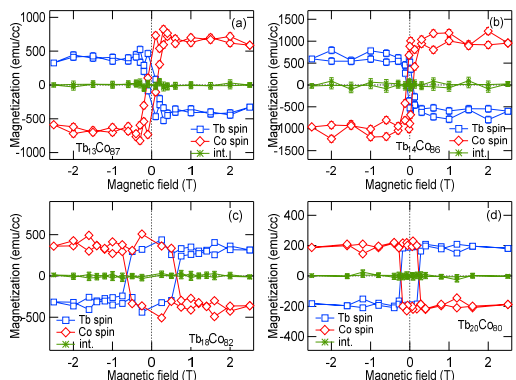


図5: 磁気コンプトン散乱プロファイルの形状解析から得られた元素選択磁化曲線。■:Tb成分、●:Co成分、x:遍歴成分。(a) $Tb_{13}Co_{87}$, (b) $Tb_{14}Co_{86}$, (c) $Tb_{18}Co_{82}$, (d) $Tb_{20}Co_{80}$.

Intermetallic charge transfer in MTiO_3 ($M = \text{Mn, Fe, Co, and Ni}$) by Ti 2p edge resonant inelastic X-ray scattering, Akane Agui, Masaichiro Mizumaki, Takayuki Uozumi, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 205 (2015) 106-110. DOI: 10.1016/j.elspec.2015.08.017

Melting of Pb Charge Glass and Simultaneous Pb-Cr Charge Transfer in PbCrO_3 as the Origin of Volume Collapse, Runze Yu, Hajime Hojo, Tetsu Watanuki, Masaichiro Mizumaki, Takashi Mizokawa, Kengo Oka, Hyunjeong Kim, Akihiko Machida, Kouji Sakaki, Yumiko Nakamura, Akane Agui, Daisuke Mori, Yoshiyuki Inaguma, Martin Schlipf, Konstantin Rushchanskii, Marjana Ležaić, Masaaki Matsuda, Jie Ma, Stuart A Calder, Masahiko Isobe, Yuichi Ikuhara, and Masaki Azuma, Journal of the American Chemical Society 137 (2015) 12719-12728. DOI:10.1021/jacs.5b08216

Suppression of temperature hysteresis in negative thermal expansion compound $\text{BiNi}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$ and zero-thermal expansion composite, Koichiro Nabetani, Yuya Muramatsu, Kengo Oka, Kiho Nakano, Hajime Hojo, Masaichiro Mizumaki, Akane Agui, Yuji Higo, Naoaki Hayashi, Mmikio Takano, and M. Azuma, APPLIED PHYSICS LETTERS 106, 061912-5 (2015), DOI: 10.1063/1.4908258, <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/106/6/10.1063/1.4908258>

〔学会発表〕(計 11 件)

Tb-Co 垂直磁化膜の磁化過程の温度変化, 安居院あかね, 柴山茜, 拜詞健人, 原子秋乃, 櫻井浩, 辻成希, 馬闌, 劉小晰, 日本物理学会第 73 回年次大会, 2018 年 3 月 22-25 日.

磁気補償近傍の Tb-Co アモルファス膜の磁気構造, 柴山茜, 安達美咲, 拜詞健人, 辻成希, 馬闌, 劉小晰, 櫻井浩, 安居院あかね, 第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2018 年 1 月 8-10 日.

Tb 優勢な Tb-Co アモルファス膜のミクロスコピックな磁化過程, 安居院あかね, 安達美咲, 柴山茜, 拜詞健人, 櫻井浩, 辻成希, 馬闌, 劉小晰, 日本物理学会

2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 21-24 日.

高い角型比の Tb-Co アモルファス膜のミクロスコピックな磁化過程, 安居院あかね, 櫻井浩, 鈴木宏輔, 安達美咲, 柴山茜, 馬闌, 劉小晰, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17-20 日.

KDP の X 線非弾性散乱, 宇田川眞行, 長谷川巧, 生見健太, 荻田典男, 筒井智嗣, 安居院あかね, 鬼頭俊介, 澤博, 富永靖徳, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17-20 日.

[Tb-Co/Al]膜の磁化のミクロスコピックな過程の研究, 安居院あかね, 櫻井浩, 鈴木宏輔, 安達美咲, 柴山茜, 劉小晰, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 13-16 日.

軌道磁気モーメントが支配する TbCo 系垂直磁化膜の磁化特性と磁化反転挙動, 安達美咲, 柴山茜, 鈴木宏, 櫻井浩, 劉小晰, 安居院あかね, 日本磁気学会, 第 40 回日本磁気学会学術講演, 会 2016 年 9 月 5-8 日.

Study of spin, orbital, and element selective magnetization processes of Tb-Co film by magnetic Compton scattering, Akane Agui, Hiroshi Sakurai, Misaki Adachi, Akane Shibayama, Kosuke Suzuki, and Xiaoxi Liu, The 39th International conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics (VUVX2016), 2016 年 7 月 3-8 日.

希土類-遷移金属垂直磁化膜のミクロスコピックな磁化過程, 安居院あかね, 水牧仁一郎, 劉小晰, 櫻井浩, 安達美咲, 柴山茜, 鈴木宏輔, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19-22 日.

$\text{Tb}_{23}\text{Co}_{77}$ 垂直磁化膜のスピン・軌道選択磁化曲線, 安居院あかね, 櫻井浩, 鈴木宏輔, 田久保翔太, 劉小晰, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 16-19 日.

$\text{Tb}_{23}\text{Co}_{77}$ 垂直磁化膜のミクロスコピックな磁化過程の観察, 安居院あかね, 櫻井浩, 鈴木宏輔, 田久保翔太, 劉小晰, 日本磁気学会, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 2015 年 9 月 8-11 日.

〔その他〕
ホームページ等
JASRI プレスリリース:

http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/press_release/2015/150223_1/
東工大ニュース:
<http://www.titech.ac.jp/news/2015/029988.html>
京都大学研究成果:
http://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research/research_results/2014/150223_1.html

量子科学技術研究開発機構 放射光科学研究センター 磁性科学研究グループ
<http://www.kansai.qst.go.jp/organization-3-3.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安居院あかね (AGUI, Akane)
国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構 上席研究員
研究者番号: 20360406