

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

|                   |                                                                                                                                                                                       |
|-------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 題目(和文)            | 内殻吸収磁気円二色性によるCo/Pt多層膜の研究                                                                                                                                                              |
| Title(English)    |                                                                                                                                                                                       |
| 著者(和文)            | 中島伸夫                                                                                                                                                                                  |
| Author(English)   | Nobuo Nakajima                                                                                                                                                                        |
| 出典(和文)            | 学位:博士(理学),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第3387号,<br>授与年月日:1997年3月26日,<br>学位の種別:課程博士,<br>審査員:                                                                                             |
| Citation(English) | Degree:Doctor (Science),<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第3387号,<br>Conferred date:1997/3/26,<br>Degree Type:Course doctor,<br>Examiner: |
| 学位種別(和文)          | 博士論文                                                                                                                                                                                  |
| Type(English)     | Doctoral Thesis                                                                                                                                                                       |

学位論文

内殻吸収磁気円二色性による Co/Pt 多層膜の研究

平成 8 年 12 月

東京工業大学大学院理工学研究科物理学専攻

中島 伸夫 / Nobuo Nakajima

# 目次

|       |                              |    |
|-------|------------------------------|----|
| 1     | 序論                           | 1  |
| 1.1   | はじめに                         | 1  |
| 1.2   | Co/Pt 多層膜について                | 3  |
| 1.3   | 内殻吸収磁気円二色性の利点                | 6  |
| 1.4   | 本研究の目的                       | 8  |
| 2     | 内殻吸収磁気円二色性 (MCD) の原理         | 9  |
| 2.1   | アトミックモデルによる説明                | 9  |
| 2.2   | 磁気光学総和則による磁気モーメントの計算         | 16 |
| 3     | 実験方法                         | 21 |
| 3.1   | 試料作製                         | 21 |
| 3.1.1 | 人工格子作製法                      | 21 |
| 3.1.2 | 高周波スパッタ法                     | 22 |
| 3.1.3 | 作製条件                         | 24 |
| 3.2   | 試料評価装置                       | 25 |
| 3.2.1 | X線回折装置                       | 25 |
| 3.2.2 | 磁気トルク装置                      | 25 |
| 3.2.3 | レーザー領域の極カー効果測定               | 29 |
| 3.3   | 内殻吸収磁気円二色性の測定                | 30 |
| 3.3.1 | 真空紫外 (VUV) 領域での反射 MCD 測定     | 30 |
| 3.3.2 | 軟 X 線 (SX) 領域での光電子全収量 MCD 測定 | 38 |
| 3.3.3 | 4eV~45eV の反射率測定              | 40 |
| 4     | 実験結果                         | 43 |
| 4.1   | 試料評価                         | 43 |
| 4.1.1 | X線回折の結果と人工周期の計算              | 44 |
| 4.1.2 | 磁気異方性の変化                     | 47 |
| 4.1.3 | 極カー効果、ヒステリシス                 | 47 |
| 4.2   | 放射光を用いた内殻吸収磁気円二色性            | 52 |
| 4.2.1 | VUV 領域の MCD および反射率           | 52 |

|          |                             |           |
|----------|-----------------------------|-----------|
| 4.2.2    | Kramers-Kronig 解析の結果        | 57        |
| 4.2.3    | SX 領域の MCD および吸収スペクトル (XAS) | 64        |
| 4.2.4    | 軌道角運動量とスピン角運動量の導出           | 67        |
| <b>5</b> | <b>議論</b>                   | <b>73</b> |
| 5.1      | VUV 領域の結果から                 | 73        |
| 5.1.1    | 強磁性配列                       | 73        |
| 5.1.2    | Co 3d バンドの narrowing        | 74        |
| 5.1.3    | Pt の寄与                      | 77        |
| 5.2      | 2p→4s 遷移の寄与                 | 77        |
| 5.3      | 磁気異方性                       | 79        |
| 5.3.1    | tight-binding モデルによる説明      | 79        |
| <b>6</b> | <b>結論</b>                   | <b>85</b> |
| <b>A</b> | <b>波動関数</b>                 | <b>87</b> |
| A.1      | スピン軌道相互作用を考慮した場合の波動関数。      | 87        |
| A.2      | 動径方向積分                      | 89        |
| <b>B</b> | <b>誘電率テンソルと反射 MCD の関係</b>   | <b>91</b> |
| <b>C</b> | <b>光の染み込み深さと光電子全収量法</b>     | <b>95</b> |
| C.1      | 光の染み込み深さ                    | 95        |
| C.2      | 光電子全収量法                     | 97        |
| <b>D</b> | <b>X 線回折データからの人工周期計算</b>    | <b>99</b> |
| D.1      | ステップモデル                     | 99        |
| D.2      | 屈折率補正                       | 101       |

# 第1章

## 序論

### 1.1 はじめに

近年、薄膜作製技術の発展により、金属人工格子・多層膜の作製が可能になり、これらの新物質に特徴的な新しい現象が見い出されている [1]。多層膜とは、図1.1に模式的に示したように元素を原子レベルで制御しながら人工的に積み重ねて作製した薄膜である。蒸着金属の組み合わせ方、積層する結晶面、および膜厚などを自由に選択できるので、新しい物性を探索する上で有力な研究対象となっている。

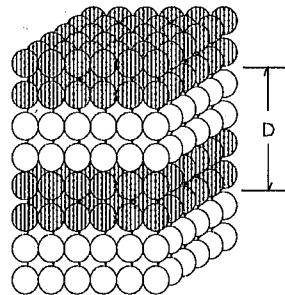


図 1.1: 人工格子・多層膜の模式図。人工周期をDで示した。

このような金属多層膜を作製するようになった発端として、メスバウアー分光法による表面や薄膜の磁性研究を挙げることができる。1969, 70年にLiebermannらは強磁性金属 (Fe, Co, Ni) の表面原子層には磁気モーメントが無いという “dead layer モデル” を提唱し

表面磁性に注目を集める契機を作った[2]。現在では通常の磁性金属表面にはdead layerは存在しないことが明らかになっており、むしろ結晶内部よりも磁気モーメントは大きいと考えられている。しかし、Liebermannらの報告はその後の表面磁性研究に弾みをつけたと言える。表面・界面を増やしたような系として多層構造を持った試料による研究へとつながる。

多層構造を持った薄膜の研究は、金属多層膜に先立って1970年頃の半導体超格子の研究により始まった[3]。金属多層膜の研究は、この半導体多層膜の研究に刺激された格好で始まった。多層構造の周期性を利用した軟X線用回折格子を目指した研究[4]はそれ以前から行われていたが、多層構造が物性へ及ぼす影響を積極的に調べる新物質探索の先駆けとなったのは、1978年のCu/Ni系の研究であろう[5]。

表面・界面の研究に端を発した金属多層膜の研究も、積層周期が短くなり原子レベル( $\sim$ 数10Å)にまで下がると新たな展開を見せはじめた。負の巨大磁気抵抗効果(Giant Magnetoresistance = GMR)[6]や表面磁化の増大、そして垂直磁気異方性(Perpendicular Magnetic Anisotropy = PMA)の出現[7]といったバルクでは見られなかった特徴的な性質がつけ出された。これらの新物性は直接応用にもつながるものとして産業界からも注目されている。理論面からもこの新物性を説明するさまざまなアイデアが提唱されている。非磁性層を介した磁性層同士の層間交換相互作用(Interlayer Exchange Coupling = IEC)[8]や、非磁性原子のバンドギャップによるポテンシャル障壁によって磁性原子に量子井戸状態(Quantum Well State = QWS)が形成される[9, 10]などといった説明が主なものである。

GMRについては、磁化に平行なスピンを持つ電子と反平行なスピンを持つ電子の電気抵抗に差があるとし、輸送過程の立場から現象論的に理解され[11, 12]、RKKY的な相互作用を考慮したIEC[13]や、QWS[14]のどちらからも一定の説明がなされている。また、この効果を使った磁気ヘッドの報告もなされている。

表面磁化の増大やPMAについての研究は、GMRの研究よりも先立って行われた。1980年代から光磁気記録媒体の研究がTbFeCo薄膜[15]などで始められていた。GMRの研究よりも実的な成果が上がらなかったのは、現象論的な解釈のみでは1meV程度の小さな異方性エネルギーを説明できないところにあったと言える[16]。1985年にCo/Pd多層膜が垂

直磁気異方性を持つことが見い出され [7]、製膜技術や真空特性、評価技術の向上に伴い、その磁性が詳しく研究された [17]。PMA を示す金属多層膜の代表的な組み合わせとしてはこの他に、Co/Au [18], Co/Pt [19], Fe/Pt [20] などが知られている。特に、Co/Pt や Co/Pd は 400nm~600nm の短波長域でカー回転角が増大するため [21]、半導体青色レーザーの開発とともに、次世代高密度光磁気記憶媒体として注目を集めることとなった。

次節では、Co/Pt 多層膜のこれまでの研究背景を説明する。

## 1.2 Co/Pt 多層膜について

Co/Pt 多層膜の最初の報告は 1988 年の de Pont 社の P. F. Carcia による垂直磁気異方性 (PMA) の発見である [19]。この多層膜は、PMA も含め以下に掲げたさまざまな特徴を持つ。

1. Co 層厚 ( $d_{\text{Co}}$ ) が薄い場合 ( $d_{\text{Co}} \lesssim 6 \sim 14 \text{\AA}$ )、垂直磁気異方性を示す。
2. 青色レーザー領域でのカー回転角が大きい。[図 1.2 [21]]
3. 保磁力 ( $H_c$ ) が大きい。( $\sim 0.2 \sim 5 \text{kOe}$ ) [図 1.3 [22]]
4. 室温よりも高いキュリー温度 ( $T_c \gtrsim 300^\circ\text{C}$ ) を持つ。(Co 単結晶は  $T_c = 1120^\circ\text{C}$  と高く、Pt-rich の CoPt 合金は逆に  $100^\circ\text{C}$  程度である。)

この他、Pt を最上層とした場合に酸化を防ぐことができる (耐腐食性) などを合わせて考えると、これらの特徴はこの媒質が次世代の高密度記録媒体の材料として非常に有望であることを示している。 $d_{\text{Co}}$  や  $H_c$ 、 $T_c$  などは作製条件によって大きく変化するが、最初の二つの性質についてはどの実験報告でも示されている。Carcia の報告の後、カー回転効果の利得 (figure of merit) について Hashimoto ら [21] が、層厚依存性について Sugimoto ら [20] と Zeper ら [23] が翌年に報告している。このカー効果については、界面付近に一定の合金層を仮定した仮想光学定数の考えによる現象論的なシュミレーションが成功を収めている。

Co/Pt 多層膜の PMA に対する物理的起源については、さまざまな議論がなされてきた。電子論的な解釈につながる最初の実験は、Pt の役割に注目して行われた Schütz らの Pt  $L_3$

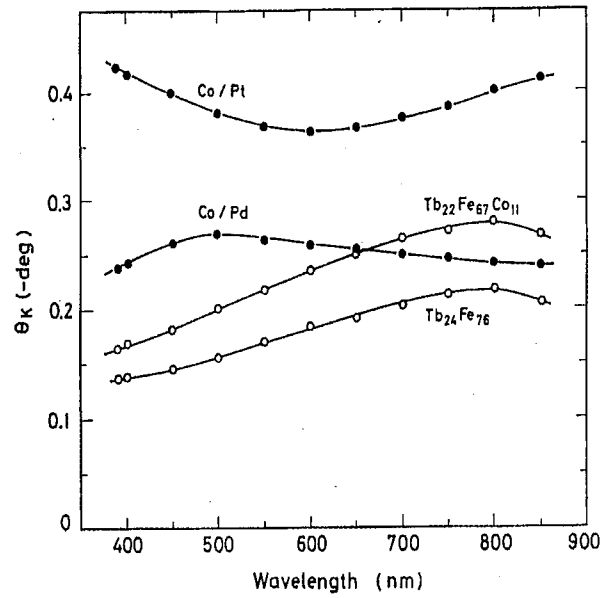


図 1.2: 可視領域の磁性材料のカー回転角。Co/Pt 多層膜は青色レーザーの領域である 400nm 付近でも、大きなカー回転効果をしめしていることがわかる。[21]

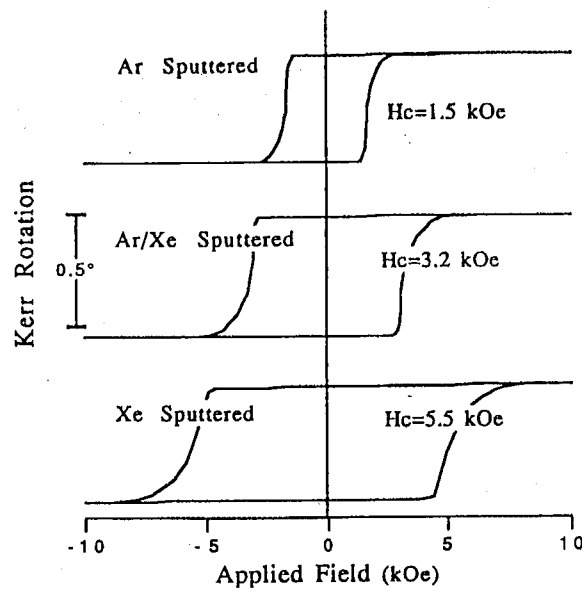


図 1.3: スパッタ法作製による Co/Pt 多層膜のカーループ。スパッタに用いる希ガスの質量を重くすると保磁力が増大する。[22]

吸収端 ( $2p_{3/2} \rightarrow 5d$ ) の X 線磁気円二色性 (Magnetic Circular X-ray Dichroism = MCXD) の実験 [24] がその最初であると言える。彼女らはその解析に基づき、Pt がスピン偏極をしており、Co(2ML)/Pt(4ML) における Pt の平均の磁気モーメント ( $\bar{\mu}_{Pt}$ ) が  $0.2\mu_B$  程度であると見積もっている。また、Pt 層厚の増大に伴って Pt の平均のスピン偏極は減少していることを示し、さらに Ebert らと協力して、これらの性質をバンド計算により説明できるとした [25]。

発見者である Carcia も予想したように [19]、PMA の起源としては界面での合金化や磁気異方性などがより重要であるとの認識が当初から言われていた。それは、現象論的にこの系の異方性エネルギー ( $K_{eff}$ ) が、

$$K_{eff} = \frac{2K_s}{d_{Co}} + K_v, \quad (1.1)$$

と記述されることによる。ここに、 $K_s$ 、 $K_v$  はそれぞれ、表面磁気異方性エネルギー、体積磁気異方性エネルギーである。すなわち、系全体の異方性エネルギー ( $K_{eff}$ ) に占める表面磁気異方性の寄与は、Co 層厚 ( $d_{Co}$ ) の増大にともなって、 $1/d_{Co}$  で減少していくことが知られていた。Lee らは、面指数の異なる Co/Pt 多層膜を GaAs 基板上に作製し、界面での対称性の破れだけによる磁気異方性出現の考えを否定した [26]。また最近、層成長に影響を及ぼす基板を変えた場合の PMA の変化についての報告もなされている [27]。この混沌とした状況に Bertero らは一定の結論を示した [22]。彼らは見事な TEM 像とともにカー効果を中心とした磁気測定を行い、積層欠陥は保磁力には大きく影響するが磁気異方性にはそれほど影響が無いことを示した。これにより、界面での Co と Pt の電子状態の混成が非常に重要であることが実験的に示されたことになる。

Co/Pt の PMA に対する理論的な研究は、Wu ら [28] と Kyuno ら [29] によるバンド計算が挙げられる。Wu らは近接した Co と Pt の強い混成が強い垂直磁気異方性の原因であるとした。Kyuno らは種々の多層膜について計算を行い、図 1.4 のような結果を得ている [30]。即ち、貴金属 2 原子層/遷移金属 1 原子層を周期とする人工格子では、ユニットセル当たり 29 ないし 30 個の価電子があると垂直磁気異方性が最大となる。実際、実験的に垂直磁化が得られている Co/Pt, Co/Pd, Co/Au, Fe/Ag などはこの範囲に入っている。

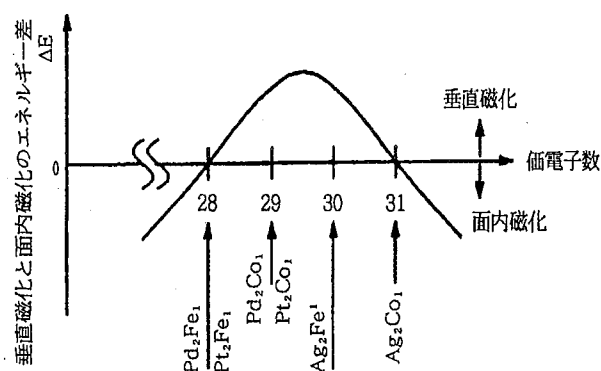


図 1.4: 垂直磁化と面内磁化のエネルギー差と価電子数依存性。[30]

現在のところ、Co/Pt 多層膜の PMA 出現の電子論的な解釈としては、界面近傍の Co と Pt の強い軌道混成と、band filling の変化によるフェルミレベルのシフトが重要であるとの認識が一般的である。

### 1.3 内殻吸収磁気円二色性の利点

Co/Pt 多層膜についての本研究での目的を述べる前に、この数年で新たな実験手段としての地位を確立した内殻吸収磁気円二色性 (Magnetic Circular Dichroism = MCD) について、その特徴を説明する。

1987 年の Schütz の巧みな装置を用いた X 線領域での MCD 測定成功 [31] に続き、軟 X 線領域 (Chen, 90 年 [32])、真空紫外領域 (Koide, 91 年 [33]) と放射光のほぼ全ての領域で目覚ましい成果をあげた。これは、円偏光放射光を利用することにより、高エネルギー領域における偏光利用実験が可能になったことの恩恵である。この磁性体の内殻光吸収および内殻光電子放出における MCD の研究は、従来の磁気光学や磁化測定、中性子回折、メスバウアー分光などの他の実験に比べ、局所的磁気情報に関して、より直接的かつ詳細な情報をもたらすことが明らかになってきた [34]。

物理的観点からは、従来の可視・紫外領域の磁気光学と内殻吸収磁気円二色性との違いは次の点にある。

1. 高エネルギー電磁波を利用するので、従来の光学測定のように、ともに波数分散のある価電子帯・伝導帯間の遷移を扱うのではなく、局在した始状態を扱える。従って第0次近似ではバンド構造に関する複雑な考察を必要としない。(図1.5参照)
2. s stateを除く内殻準位では価電子状態よりスピン軌道相互作用が強く、大きなMCDが期待される。
3. シグナルが大きいので、可視・紫外領域で用いた変調法による分光測定に頼らなくてよい。
4. 吸収端を適当に選ぶことで、各原子の磁性を独立に調べることができる。
5. スピン軌道相互作用によって吸収端がはっきりと分離しているならば、磁気光学総和則を用いて各元素ごとの軌道磁気モーメントの $z$ 成分の期待値( $\mu_l^z$ )とスピン磁気モーメントの期待値( $\mu_s$ )を独立に算出できる。

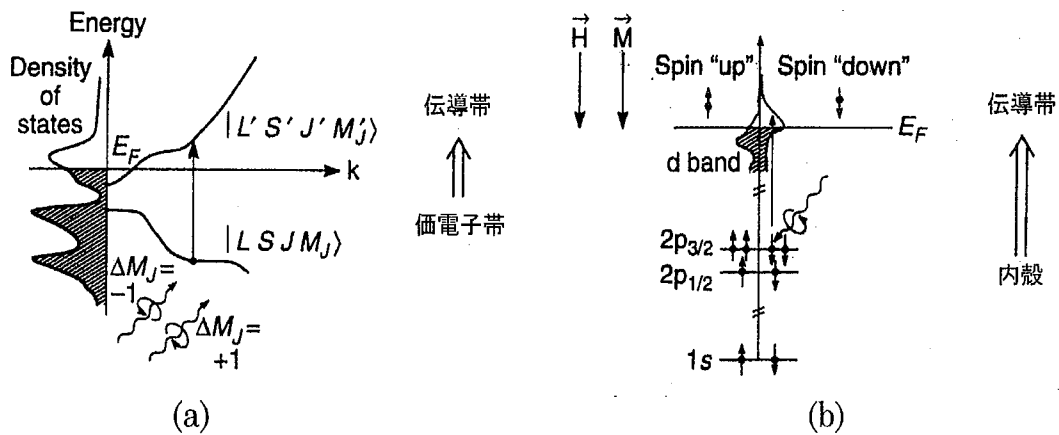


図 1.5: (a) 可視・紫外光による価電子帯から伝導帯への光吸収。(b) 真空紫外・軟X線・X線による内殻光吸収。[36]

これらの特色のうち4, 5は、多原子系・磁気多層膜の研究では特に威力を発揮する。

内殻吸収MCDの原理や磁気光学総和則については第2章で説明する。

## 1.4 本研究の目的

1.2節で述べたこれまでのCo/Pt多層膜の研究において欠けているものは何か。それは、肝心のCo層の役割の解明である。この系の磁氣的性質は大方Coのそれによって決まっており、垂直磁気異方性についてもCoの磁気異方性に大きく左右されていると考えるのが自然である。Schützらによって見積もられたPtの磁気モーメントは最大でも $0.2(\mu_B/\text{atom})$ 程度[24]であり、中性子回折の実験結果[35]や理論計算などで求まるCo層のそれに比べて約一桁小さい。

従来の磁気測定の結果では系全体の磁氣的性質しかわからないため、Co/Pt多層膜中でのCoの性質を明確に論じるまでには至っていない。この点で、前節で説明した内殻吸収MCDの測定は真価を発揮することになる。

本研究ではまず、明確な報告のなされていない「磁気異方性の変化に対するCo層の役割」を明らかにすることを目的とした。また、内殻吸収MCDの原理と照らし合わせて換言すれば、Co層(磁性層)の厚さを徐々に変化させて磁気異方性の変化に伴うフェルミ面近傍の電子状態の変化を調べる、ということもできる。特に、次章で説明する磁気光学総和則による磁気モーメントの定量的解析を主眼として研究を行った。

本論文の構成は次の様になっている。第2章では本研究の実験手段である内殻吸収MCDについてアトミックモデルによる説明を行い、スペクトルとそこから得られる物理量との関係を明らかにする。また、磁気光学総和則を用いた定量的解析の道筋を示す。第3章では試料作成から放射光実験に至るまでの実験手段を説明する。結果を第4章に示す。第5章で得られた結果をもとに実験的立場から議論する。第6章は結論である。

## 第2章

# 内殻吸収磁気円二色性 (MCD) の原理

### 2.1 アトミックモデルによる説明

この章では、どのような起源でMCDが生ずるのかを説明する。

光を古典的な波動とし、物質系を量子力学的に取り扱う半古典的な立場の下で、久保公式として知られる線型応答理論によれば、誘電率テンソルは次式で与えられる [37]。

$$\varepsilon_{xx}(\omega) = 1 + \frac{N_0 e^2}{m \varepsilon_0} \sum_{i < f} (\rho_i - \rho_f) \frac{(f_x)_{fi}}{\omega_{fi}^2 - (\omega + i\gamma)^2}, \quad (2.1)$$

$$\varepsilon_{xy}(\omega) = -i \frac{N_0 e^2}{2m \varepsilon_0} \sum_{i < f} (\rho_i - \rho_f) \frac{\omega_{fi} \{(f_+)_{fi} - (f_-)_{fi}\}}{\omega \{\omega_{fi}^2 - (\omega + i\gamma)^2\}}, \quad (2.2)$$

ここに、 $N_0$ 、 $m$ 、 $e$ 、 $\varepsilon_0$  はそれぞれ単位体積あたりの原子数、電子質量、素電荷、真空の誘電率である。また、 $\omega_{fj} = (E_f - E_i)/\hbar$ 、 $\rho_n = \exp(-E_n/kT)/\sum_m \exp(-E_m/kT)$  であり、始状態 ( $|i\rangle$ ) から終状態 ( $|f\rangle$ ) への吸収を振動子強度 ( $f_\alpha$ ) を用いて表している。 $f_+$  および  $f_-$  はそれぞれ右および左円偏光<sup>1</sup>による振動子強度である。この式において、始状態以外の寿命はすべて等しいと仮定し、それを  $\gamma$  と置いた。また、光の進行方向を  $+z$  方向とした。振動子強度は偏光ベクトル  $e_\alpha$  と電子の位置ベクトル  $r$  から、

$$f_\alpha = \frac{2m\omega_{fi}}{\hbar} |\langle f | e_\alpha \cdot r | i \rangle|^2, \quad (2.3)$$

と定義される。(2.2) 式からわかるように、左右円偏光の振動子強度の差は  $\varepsilon_{xy}$  に現れる。

<sup>1</sup>ここでの右(左)円偏光とはいわゆる右(左)ネジ円偏光を指す。即ち、光の進行方向をネジの進む向きに見立てたとき、電場ベクトルがネジ頭の方から見て(反)時計回りに回る光を指す。右(左)円偏光のヘリシティは+1(-1)となるため、これを $\sigma_+$ ( $\sigma_-$ )偏光ともいう。

始(終)状態の軌道量子数、磁気量子数をそれぞれ  $l_i(l_f)$ 、 $m_i(m_f)$  とし、左右円偏光の偏光ベクトル

$$\mathbf{e}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y), \quad (2.4)$$

を用いて(2.3)式の  $\langle f | \mathbf{e}_{\pm} \cdot \mathbf{r} | i \rangle$  内を変形する[38]。

$$\begin{aligned} \langle f | \mathbf{e}_{\pm} \cdot \mathbf{r} | i \rangle &= \left\langle f \left| \frac{1}{\sqrt{2}}(x \pm iy) \right| i \right\rangle \\ &= \left\langle f \left| \mp \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r Y_1^{\pm 1} \right| i \right\rangle \\ &= \pm \mathcal{R} (-1)^{l_i+l_f-1} i^{1-l_i+l_f} \sqrt{\frac{2l_i+1}{2l_f+1}} \\ &\quad \times \langle l_i \ 0 \ 1 \ 0 | l_f \ 0 \rangle \langle l_i \ m_i \ 1 \ \pm 1 | l_f \ m_f \rangle, \end{aligned} \quad (2.5)$$

(2.5)式において、 $\mathcal{R}$  は動径積分による係数、二つの  $\langle \ \rangle$  は Clebsh-Gordan 係数(c.g. 係数)である。二つめの c.g. 係数から右円偏光の場合は  $m_f = m_i + 1$  の遷移 ( $\sigma_+$  遷移) のみが起こり、左円偏光の場合には  $m_f = m_i - 1$  なる遷移 ( $\sigma_-$  遷移) のみが起こることが結論される。また、二つの c.g. 係数から、終状態の軌道量子数として、どちらの円偏光の場合も  $l_f = l_i \pm 1$  の場合のみ遷移確率が零でないことが結論される。これは、いわゆる双極子遷移の選択則として知られているものである。各状態間の遷移確率は本質的に c.g. 係数  $\langle l_i \ m_i \ 1 \ \pm 1 | l_f \ m_f \rangle$  の二乗であたえられ、それに始状態と終状態の存在確率 ( $\rho_i, \rho_f$ ) を乗じたものが遷移強度となる。

図2.1に、3d 遷移金属の  $L_{2,3}(2p_{1/2,3/2} \rightarrow 3d)$  吸収に対する準位図と左右円偏光による相対遷移確率(丸中の数字)を模式的に示した[39]。同様の図が  $M_{2,3}(3p_{1/2,3/2} \rightarrow 3d)$  吸収に対しても描ける。図2.1上図は終状態で形成される 2p 内殻正孔のスピン軌道相互作用を無視した場合を、下図はそれを考慮した場合を示す。3d 準位の占有確率を箱内の斜線部で表わす。図の左半分は多数(上向き)スピン状態を、右半分は少数(下向き)スピン状態を示す。遷移確率の計算に用いる波動関数などは、付録Aにまとめた。

交換相互作用のために 3d 多数スピン状態はほとんど占有され、3d 少数スピン状態に多くの非占有状態が存在する。図2.1 では、以下の議論を簡単にするため、3d 多数スピン状

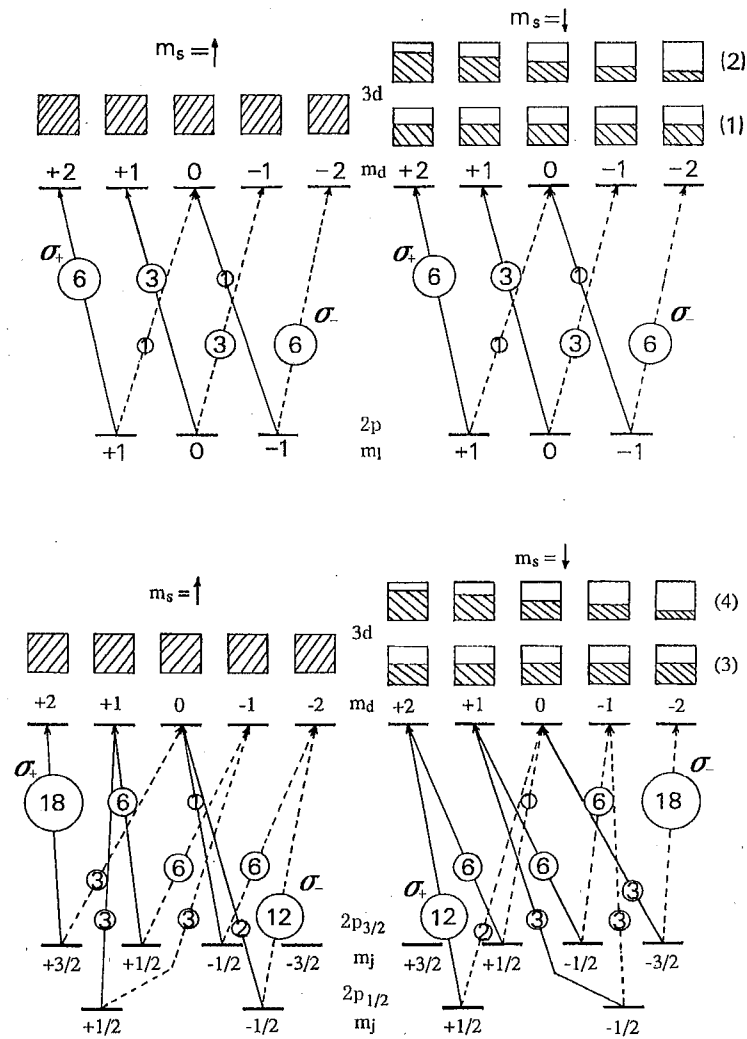


図 2.1: 3d 遷移金属  $L_{2,3}$  吸収に対する円偏光相対遷移確率 (丸の中の数字) と準位図。右円偏光 ( $\sigma_+$  偏光) による遷移を実線で、左円偏光 ( $\sigma_-$  偏光) による遷移を破線で示す。上図は始状態である p 軌道にスピン軌道相互作用が無い場合を、下図はある場合を示す。四角の箱内の斜線は各 3d 準位の占有確率を表す。箱の右横の (1) ~ (4) の数字は、(1) と (3) が軌道磁気モーメントが無い場合を (2) と (4) はそれがある場合を区別する。

態は完全に占有されていると仮定した。この仮定は金属 Co[40] や Co/Pt 多層膜の Co[41] において近似的に実現しており、現実の系からあまり遊離してはいない。以下 3d 多数スピン状態は完全に占有されているから、少数スピン状態だけを考えればよい。図の右に示した数字は、(1) と (3) が 3d 軌道磁気モーメントが無い場合を、(2) と (4) はそれがある場合を区別する。

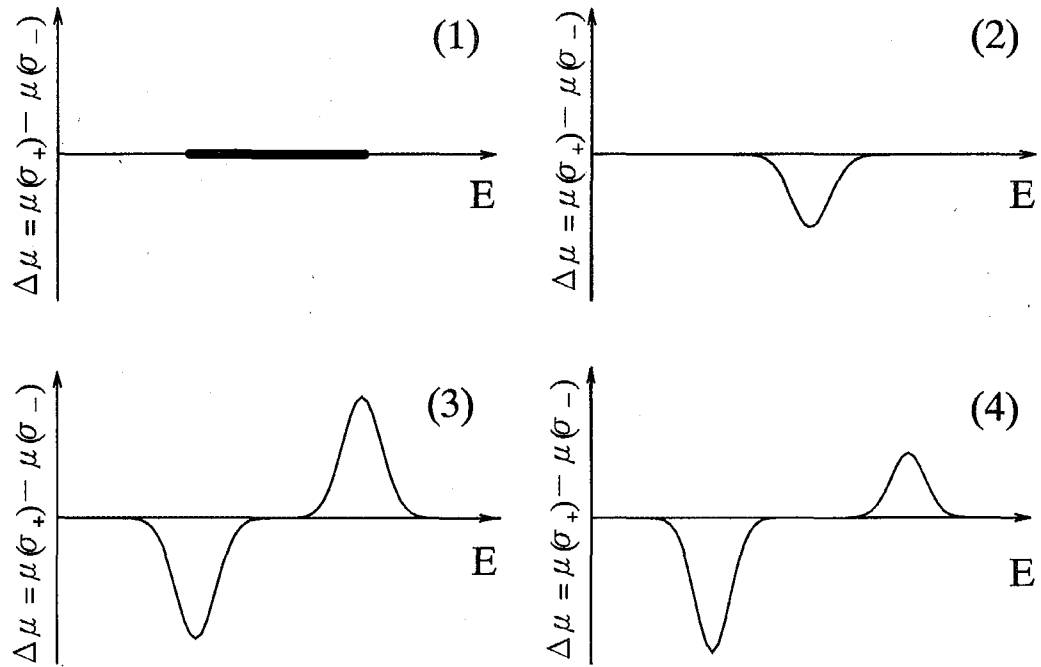


図 2.2: 図 2.1 の (1)~(4) の各場合に期待される MCD スペクトル。(1) の場合には MCD は現れない。

順に MCD 断面積  $\Delta I = I(\sigma_+) - I(\sigma_-) = \int (\mu_+ - \mu_-) d\omega$  がどのようなになるか見てみる (ここに、 $I(\sigma_+)$ ,  $I(\sigma_-)$  はそれぞれ右および左円偏光に対する吸収断面積の積分強度を表す)。

図 2.1 上図の (1) の場合は、視察から直ちに  $\Delta I = 0$  であることがわかる。つまり、MCD は全く生じない。これは、始状態、終状態ともにスピン軌道相互作用がないためである。上図の (2) の場合には、 $\sigma_+$  と  $\sigma_-$  の遷移確率は同じであるが、 $\sigma_-$  に対する 3d 準位の方が  $\sigma_+$  に対するそれに比べ、相対的に非占有状態が多い。これにより、遷移強度に差が生じて  $\Delta I < 0$  なる MCD 線が生じる。始状態、終状態とも縮退しているので MCD は一本だけである。ここまでの結果を図 2.2 の (1) と (2) に吸収線に幅を持たせて示す。図 2.1 の (2) において、3d 準位にスピン軌道相互作用があるとしておきながら、それより深い 2p 準位にはないと仮定したのは非現実的である。しかし、ここで示したかったのは、(1) と (2) の場合からわかるように、MCD が生ずるためにはスピン軌道相互作用が不可欠だということである。電子スピンと光子スピンのカップリングは、電子状態にスピン軌道相互作用があってはじ

めて生ずる。図2.2の(2)は、図2.1の(2)の場合に対応し、現実の系において内殻正孔のスピン軌道相互作用が十分小さい極限の場合のMCDスペクトルを予測している。

次に、2p軌道がスピン軌道相互作用を受けている場合が図2.1の下図である。これは、現実のモデル化となっている。図2.1の(3)と(4)を見てみる。(3)の場合は、各 $m_d$ 状態の占有確率は等しいから、相対的MCD強度比を求めるのに、遷移確率だけを考慮すれば良い。簡単な計算により、 $\Delta I(2p_{3/2} \rightarrow 3d) : \Delta I(2p_{1/2} \rightarrow 3d) = -1 : 1$ であることがわかる。したがってMCDスペクトルは、図2.2の(3)に示すように正負反対称の形になると予想される。図2.1の(4)の場合には、各 $m_d$ 状態の占有確率の片寄り方を考慮すると、(3)の場合と比較して、 $2p_{3/2}$ からの遷移においては $\sigma_-$ 遷移が増大するのに対し、 $2p_{1/2}$ からの遷移においては $\sigma_+$ 遷移が弱まることわかる。この結果を示したのが図2.2の(4)である。すなわち、 $L_3$ 吸収端で負の大きなMCDが、 $L_2$ 吸収端で正の小さなMCDが期待される。 $3d$ 軌道磁気モーメントが大きいほど、MCDスペクトルパターンの非対称度は大きくなる。このことをもっと定量的に記述するのが、最近発見された磁気光学総和則 [42, 43] であり、吸収端MCDの積分強度の和は軌道磁気モーメントに直接比例する。これについては次節で改めて説明する。ここで述べたことは、 $3d$ 遷移金属の $M_{2,3}$ 吸収端に対しても同様に成り立つ。

本研究結果の解釈に必要ないくつかの吸収端でのスペクトルパターンについて述べておく。本研究で用いているCo/Pt多層膜のような系では、Ptの $5d$ 状態とCo $3d$ 状態との混成により、Pt原子が磁気的に変化を起こす可能性がある。そこで、Pt $5d$ 状態がスピン偏極し、非占有状態は少数スピン状態が支配的であるという合理的な仮定のものに、スピン軌道分裂したPt $4f_{5/2,7/2}$ 内殻準位から $5d$ 非占有状態への遷移( $N_{6,7}$ 吸収端)に伴うMCDを考察する。この場合の相対遷移確率を、 $L_{2,3}$ 吸収のときと同様に、図2.3に示した。また、箱の右横の数字(3)と(4)は図2.1の(3)と(4)と同様に、(3)が $5d$ 軌道磁気モーメントが無い場合を、(4)がある場合を示している。それぞれの場合に期待されるスペクトルパターンを図2.4に示す。 $N_{6,7}$ 吸収においては、 $5d$ 準位にスピン軌道相互作用がない場合には、 $\Delta I(N_7) : \Delta I(N_6) = 1 : -1$ である。また、各 $m_d$ 状態の占有確率の片寄り方を考慮すると、 $L_{2,3}$ 吸収の場合と同様に、スペクトルパターンの非対称度が大きくなる。今、CoとPtの全磁気モーメントに対して同じ量子化軸を取ったとすると、このMCDパターンはCo $L_{2,3}$ 及び $M_{2,3}$ 吸

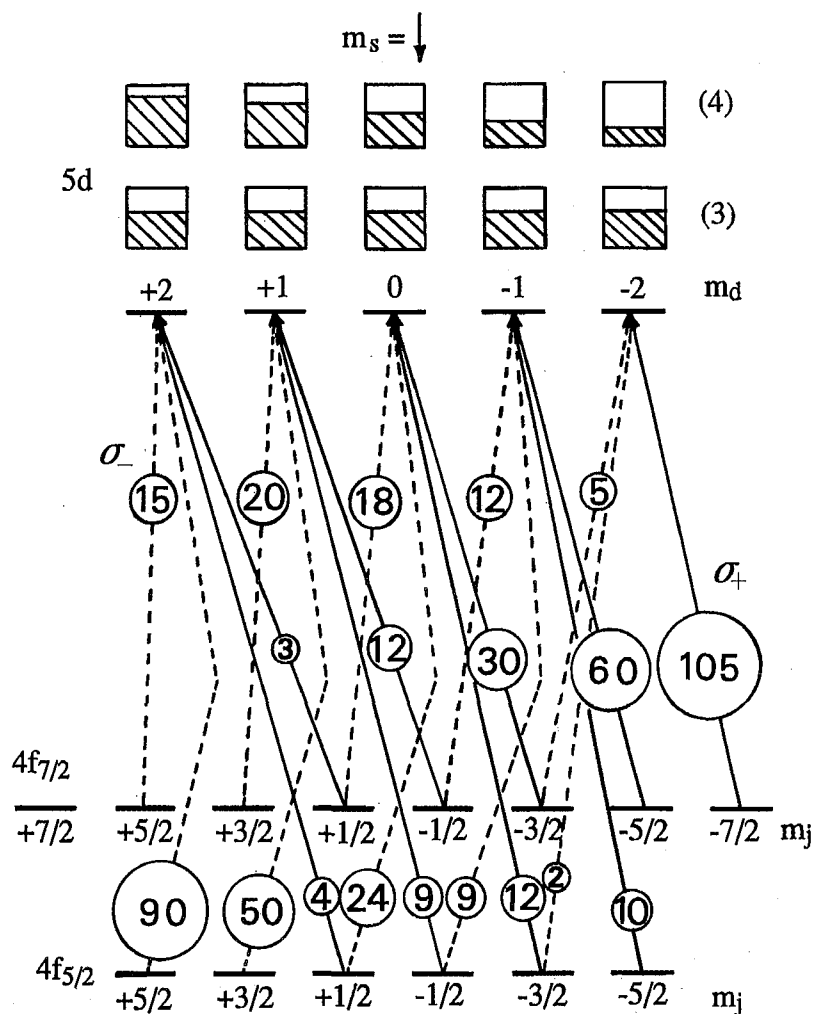


図 2.3: 5d 遷移金属  $N_{6,7}$  吸収に対する円偏光相対遷移確率(丸の中の数字)と準位図。始状態である f 軌道にスピン軌道相互作用ある場合を示す。四角の箱は図 2.1 に同じ。

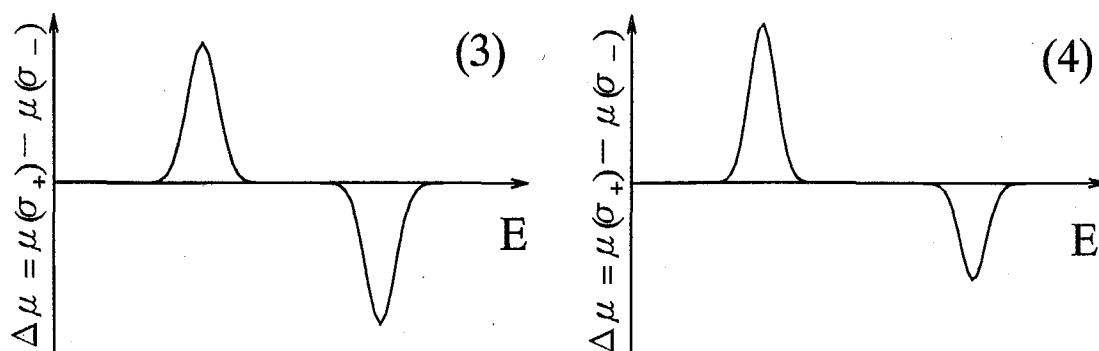


図 2.4: 図 2.3 の (3) と (4) の各場合に期待される MCD スペクトル。

収端でのそれと反対符号である。したがって、 $N_{6,7}$ 吸収端でのMCDの符号が $Co\ L_{2,3}$ 及び $M_{2,3}$ 吸収端でのそれと反対か同じかは、それぞれ $Co$ と $Pt$ の全磁気モーメントが平行か反平行かである、という重要な判断基準を得たことになる。

もう一つだけ簡単な場合を明確にしておく。 $Co\ L_{2,3}$ 吸収端では終状態として、 $3d$ 状態のみを考えていたが、本節の始めに示した双極子遷移における選択則では $4s$ 状態も遷移許容である。図2.5に $p \rightarrow s$ 遷移のときの相対遷移確率とそのときに期待されるMCDスペクトルパターンを示す。 $4s$ 状態がスピン分極していない場合( $\langle S_z \rangle_{4s} = 0$ )、上向きスピンと下向き

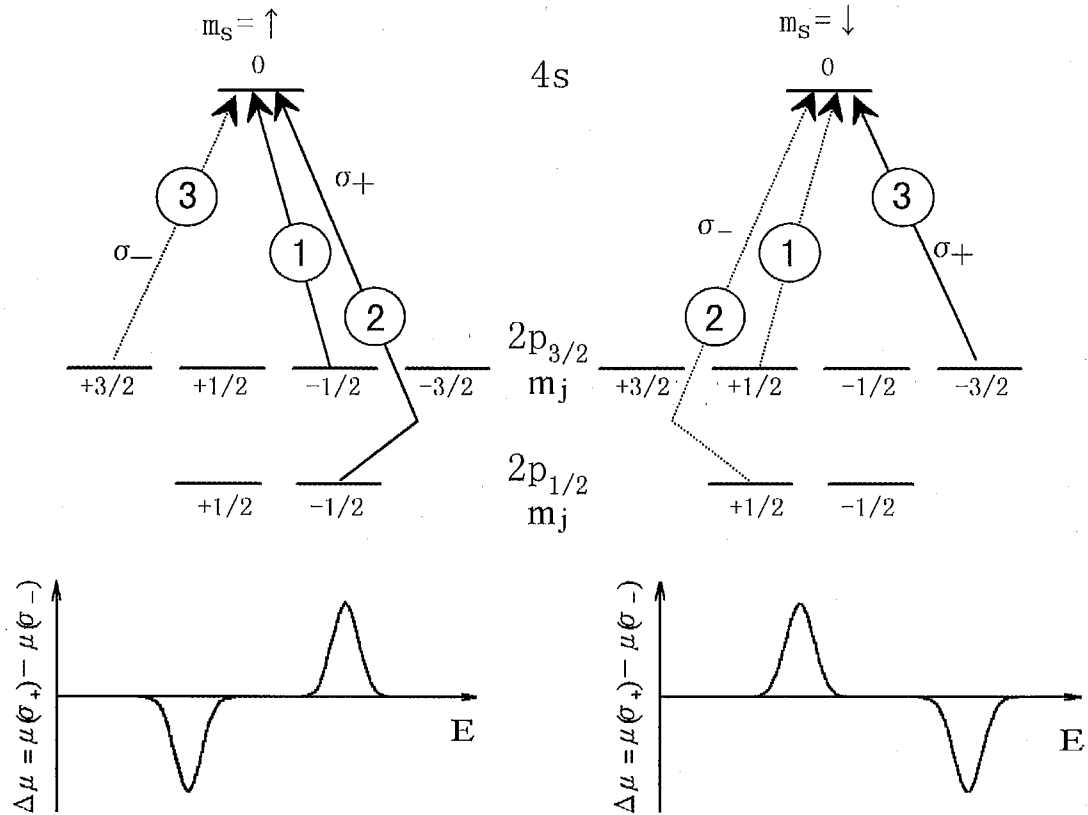


図 2.5:  $p \rightarrow s$ 遷移の相対遷移確率と期待されるMCDスペクトルパターン。

スピンのMCDスペクトルパターンは正反対になっているために、相殺されて現れない。スピン分極があり、仮に上向きスピンの非占有状態が多い場合、 $p \rightarrow s$ 遷移によるMCDシグ

ナルは、 $p \rightarrow d$  遷移による MCD シグナルと重なり、図 2.2(3) または (4) のそれぞれのピークを大きくする結果となる。ただし、(2.5) 式に現れた動径方向積分  $\mathcal{R}$  を考慮すると、 $4s$  状態の寄与は小さいと予想される。(第5章、付録 A 参照)

## 2.2 磁気光学総和則による磁気モーメントの計算

前節で示した MCD スペクトルパターンの非対称度と軌道磁気モーメントの  $z$  成分 ( $\mu_l^z$ ) との関係を実量的に記述する理論式が、1992 年に Thole らにより導出された [42]。また翌年、同グループの Carra らにより MCD スペクトル強度とスピン磁気モーメント ( $\mu_s$ ) の関係を示した式が導出された [43]。前者を  $\langle L_z \rangle$  総和則、後者を  $\langle S_z \rangle$  総和則と呼ぶ。また両者を合わせて MCD 総和則と呼ぶ。軌道磁気モーメントおよびスピン磁気モーメントはそれぞれ軌道角運動量  $\langle L_z \rangle$  およびスピン角運動量  $\langle S_z \rangle$  と簡単な関係式、

$$\mu_l^z = -\mu_B \langle L_z \rangle, \quad (2.6)$$

$$\mu_s = -2\mu_B \langle S_z \rangle, \quad (2.7)$$

で結びついている。(ここに、 $\langle L_z \rangle$  および  $\langle S_z \rangle$  は  $\hbar$  単位。)

軌道量子数  $c$  の内殻電子が、軌道量子数  $l$  の価電子非占有軌道へ遷移する場合を考える。遷移の終状態で形成される内殻正孔のスピン軌道相互作用により、内殻準位は  $j_+ = c + 1/2$  の状態と  $j_- = c - 1/2$  の状態に分裂するが、この  $j$  多重項を出発点とした場合、MCD 総和則は次式で与えられる [42, 43]。

$$\frac{\int_{j_++j_-} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{j_++j_-} (\mu_+ + \mu_- + \mu_0) d\omega} = -\frac{l(l+1) - c(c+1) + 2}{2l(l+1)(4l+2-n)} \langle L_z \rangle, \quad (2.8)$$

$$\begin{aligned} \frac{\int_{j_+} (\mu_+ - \mu_-) d\omega - \frac{c+1}{c} \int_{j_-} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{j_++j_-} (\mu_+ + \mu_- + \mu_0) d\omega} &= -\frac{l(l+1) - c(c+1) - 2}{3c(4l+2-n)} \langle S_z \rangle \\ &\quad - \frac{l(l+1)\{l(l+1) + 2c(c+1) + 4\} - 3(c-1)^2(c+2)^2}{6cl(l+1)(4l+2-n)} \langle T_z \rangle, \end{aligned} \quad (2.9)$$

ここに、 $n$  は価電子数、 $\langle T_z \rangle$  は磁気双極子演算子の期待値であり、 $\mu_{\pm}$  および  $\mu_0$  はそれぞれ  $\sigma_{\pm}$  円偏光および  $z$  軸に偏光した直線偏光に対する吸収係数を表す。両式とも左辺はス

ベクトルより得られる実測量であり、右辺は光の吸収過程により決まる定数だけであとは、求めようとしている物理量  $\langle L_z \rangle$ 、 $\langle S_z \rangle$  と  $\langle T_z \rangle$  である。特に  $\langle L_z \rangle$  については何ら磁気秩序に関するモデルをたてることなく、スペクトルだけから(2.8)式より求まることがわかる。また、 $\langle T_z \rangle$  項は小さく[44]、これを無視すれば、 $\langle S_z \rangle$  についても実験だけから求まる。どちらの総和則とも、大きな仮定無しに実験で得られるスペクトルだけから  $\langle L_z \rangle$  および  $\langle S_z \rangle$  を分離して求めることができるという長所を持つ。

このままでは少々煩雑なので、より具体的に  $p \rightarrow d$  遷移 ( $c = 1, l = 2$ ) の場合に(2.8)式と(2.9)式を考える。

$$\langle L_z \rangle = -2(10 - n) \frac{\int_{j_+ + j_-} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{j_+ + j_-} (\mu_+ + \mu_- + \mu_0) d\omega}, \quad (2.10)$$

$$\langle S_z \rangle + \frac{7}{2} \langle T_z \rangle = -\frac{3}{2}(10 - n) \frac{\int_{j_+} (\mu_+ - \mu_-) d\omega - 2 \int_{j_-} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{j_+ + j_-} (\mu_+ + \mu_- + \mu_0) d\omega}. \quad (2.11)$$

実際の測定結果を用いて計算する場合、 $\mu_0$  は  $\mu_0 = (\mu_+ + \mu_-)/2$  として扱う。 $\langle L_z \rangle$  総和則(2.10)式の分子に現れた積分が前節で予想した“MCDスペクトルの非対称度と軌道磁気モーメントの関係”を明確に示している。図2.1で軌道磁気モーメントがないとした(3)の場合に予想されるスペクトル(図2.2(3))の積分強度は0であり、軌道磁気モーメントが発生した場合のスペクトル(図2.2(4))の積分強度は0でない。(2.10)式の係数  $(10 - n)$  はd軌道の正孔の数である。この値はMCD実験からは求められないので、ほかの実験結果か、理論計算による値などを用いる必要がある。

$\langle S_z \rangle$  総和則(2.11)式は非対称度とは関係ない。右辺第一項の分子を見ると  $j_+$ 、 $j_-$  の両吸収端のMCDスペクトルの積分値を符号を反対にして足し合わせている。図2.2(3)や(4)でMCDスペクトルが0になっているところを境に、低エネルギー側( $j_+$ )と高エネルギー側( $j_-$ )のMCDスペクトル面積を計算して足し合わせた格好になっている。 $\int_{j_-}$  の積分にかかっている係数2は、 $j_+$  吸収端と  $j_-$  吸収端の相対強度比 2:1 を補償するものである(これは始状態をp軌道としたためで、一般には  $(c+1):c$  になる)。左辺第二項は磁気双極子演算子  $\mathbf{T} = \sum_i (\mathbf{s}_i - 3\mathbf{r}_i(\mathbf{r}_i \cdot \mathbf{s}_i)/r_i^2)$  のz方向への射影成分  $T_z$  の期待値である。この項は、基底状態において、スピン軌道相互作用や結晶場の効果によって電荷分布が著しく歪んだ場合に現れる。

(2.11) 式において、 $\langle T_z \rangle$  項を無視した場合、これと(2.10) 式とを組み合わせると、次の重要な式を得る。

$$\frac{\langle L_z \rangle}{\langle S_z \rangle} = \frac{4}{3} \frac{\int_{j_++j_-} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{j_+} (\mu_+ - \mu_-) d\omega - 2 \int_{j_-} (\mu_+ - \mu_-) d\omega} . \quad (2.12)$$

この式は(2.10) 式や(2.11) 式の分母に現れていた吸収スペクトルの積分が含まれておらず、MCD スペクトルだけから計算できる。実際の吸収スペクトルをもちいて(2.10) 式や(2.11) 式の計算を行う場合、吸収スペクトルに含まれるバックグラウンドを見積る必要がある。その見積り方によって生じる計算値の誤差を除去することができる。さらに、係数  $(10 - n)$  として現れていたd軌道の正孔の数を考慮しなくて良い。以上のことから、 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$  は純粋にMCD スペクトルだけから計算される値である。唯一残された不確定要素は、 $j_+$  と  $j_-$  の境界を実際のスペクトルでどこに設けるかという点である。これについては第4章で述べる。

最後に  $\langle L_z \rangle$  総和則に対する簡単な説明をしておく [45]。図2.1で示したように、価電子帯の占有率の対称性の破れが、 $\langle L_z \rangle$  の増大につながる。この、MCD 積分と  $\langle L_z \rangle$  の比例関係は図2.1の確率計算で用いたc.g. 係数の一般的な性質によるものである。c.g. 係数の一般的な性質

$$\langle j_1 - m_1 \ j_2 - m_2 | j - m \rangle = (-1)^{j_1+j_2-j} \langle j_1 \ m_1 \ j_2 \ m_2 | j \ m \rangle \quad (2.13)$$

を、(2.5) 式の最後に現れたc.g. 係数に適用すると、選択則に留意して、

$$\langle l_i - m_i \ 1 - 1 | l_f - m_i - 1 \rangle = \langle l_i \ m_i \ 1 \ 1 | l_f \ m_i + 1 \rangle \quad (2.14)$$

を得る。この関係式は図2.1でスピン軌道相互作用を入れない場合の遷移確率が  $\sigma_+$ ,  $\sigma_-$  偏光に対して対称的になっていることを一般的に言い表したものである。この関係式から図2.1(3)で表される  $\langle L_z \rangle = 0$  の場合には、MCD 積分  $\Delta I = \int (\mu_+ - \mu_-) d\omega = 0$  であることがわかる。したがって、 $\Delta I$  は  $\langle L_z \rangle$  の奇関数であり、 $\langle L_z \rangle$  の奇次の項で展開できる。ただし、三次以上の項は恒等的に0であると予想される。なぜなら  $|\langle l_i \ m_i \ 1 \ \pm 1 | l_f \ m_f \rangle|^2$  は  $m_f$  に関しては高々二次の多項式であり、また  $\langle L_z \rangle$  は、 $-\sum_k m_f(k) h(k)$  ( $k = 1 \sim 4l_f + 2$ ) で与えられるからである。 $(h(k))$  は  $k$  番目の軌道のホール数。) したがって、 $\Delta I$  は  $\langle L_z \rangle$  に比例

することになる。係数については、実際に計算を行う必要がある [46] が、全ての  $m_i, m_f$  に対する遷移について積分を行うことになるから、この係数が  $l_i, l_f$  および  $\sum_k h(k)$  の関数として表されることは予想できる。結果は (2.8) 式、または (2.10) 式になる。

## 第3章

# 実験方法

### 3.1 試料作製

#### 3.1.1 人工格子作製法

金属人工格子の作製にはスパッタ法と真空蒸着法の二つがよく用いられる<sup>1</sup>。前者は後者と比較して次のような特徴がある。

- 膜と基盤との付着力が強い。
- 高融点，低蒸気圧の材料でも作製可能。
- 組成の制御が容易。
- 作製時間が短い(生産性が良い)。

一方、欠点としては

- スパッタ粒子の運動エネルギーが高いために界面での拡散が大きい。
- RHEED<sup>2</sup>振動やSMOKE<sup>3</sup>などを利用したその場観察による試料評価ができない。

---

<sup>1</sup>分子線蒸着 (Molecular Beam Epitaxy=MBE) 法などは、真空蒸着法の一つとして分類される。より詳しい作製方法や分類については、文献[17]を参考にされたい。

<sup>2</sup>Reflection High Energy Electron Diffraction

<sup>3</sup>Surface Magneto-Optical Kerr Effect

などが挙げられる。以上の点から、スパッタ法は生産性等の応用面に重点を置いた研究に適しており、真空蒸着法は基礎的な材料の研究に適している。

本研究で用いた Co/Pt 多層膜はスパッタ法で作製した。これは、生産性の良さと組成制御の容易さといった長所を生かすと同時に、Pt が高融点・低蒸気圧材料であることによる選択である。放射光利用実験では実験可能なマシンタイムの配分が予め決まっており、それまでに10数個の試料を作製しなければならない(生産性)。さらに、研究方針で掲げたように、磁性層厚を徐々に変えた一連の試料を作製する必要があった(組成制御)。また、放射光利用実験に際し、可能な限り新鮮な試料を使うことで、さまざまな要因による試料の経時変化を押さえることも考えた。表3.1に金属人工格子の材料として使われることの多い元素の融点、蒸気圧と温度の関係をまとめた。この表から、作製チェンバーなどの真空下で

表 3.1: 金属人工格子の主な材料の融点および蒸気圧と温度の関係。[47, 48]

| 元素 | 融点 (°C) | 各蒸気圧に達する温度 (°C) |        |         |         |          |
|----|---------|-----------------|--------|---------|---------|----------|
|    |         | 1Torr           | 10Torr | 100Torr | 400Torr | 760 Torr |
| Cr | 1890    | 1610            | 1840   | 2140    | 2360    | 2480     |
| Fe | 1535    | 1780            | 2040   | 2370    | 2620    | 2750     |
| Co | 1494    | 1910            | 2170   | 2500    | 2760    | 2870     |
| Cu | 1085    | -               | 1870   | 2190    | 2440    | 2600     |
| Pd | 1554    | 1470            | 2290   | 2670    | 2950    | 3140     |
| Pt | 1772    | 2600            | 2940   | 3360    | 3650    | 3830     |
| Au | 1064    | 1880            | 2160   | 2520    | 2800    | 2940     |

もPtは蒸発しにくいことがわかる(真空蒸発法は不向き)。これらの点を合わせ考えると、スパッタ法による作製が有利であると結論できる。

### 3.1.2 高周波スパッタ法

本研究に用いた試料は、電子技術総合研究所(電総研)量子材料研究室の片山利一先生所有の高周波スパッタ装置を用いて作製した。図3.1に装置の概念図[49]を示す。この装置では基板ホルダーが回転できるようになっている。180°回転すると一度停止し、ターゲット

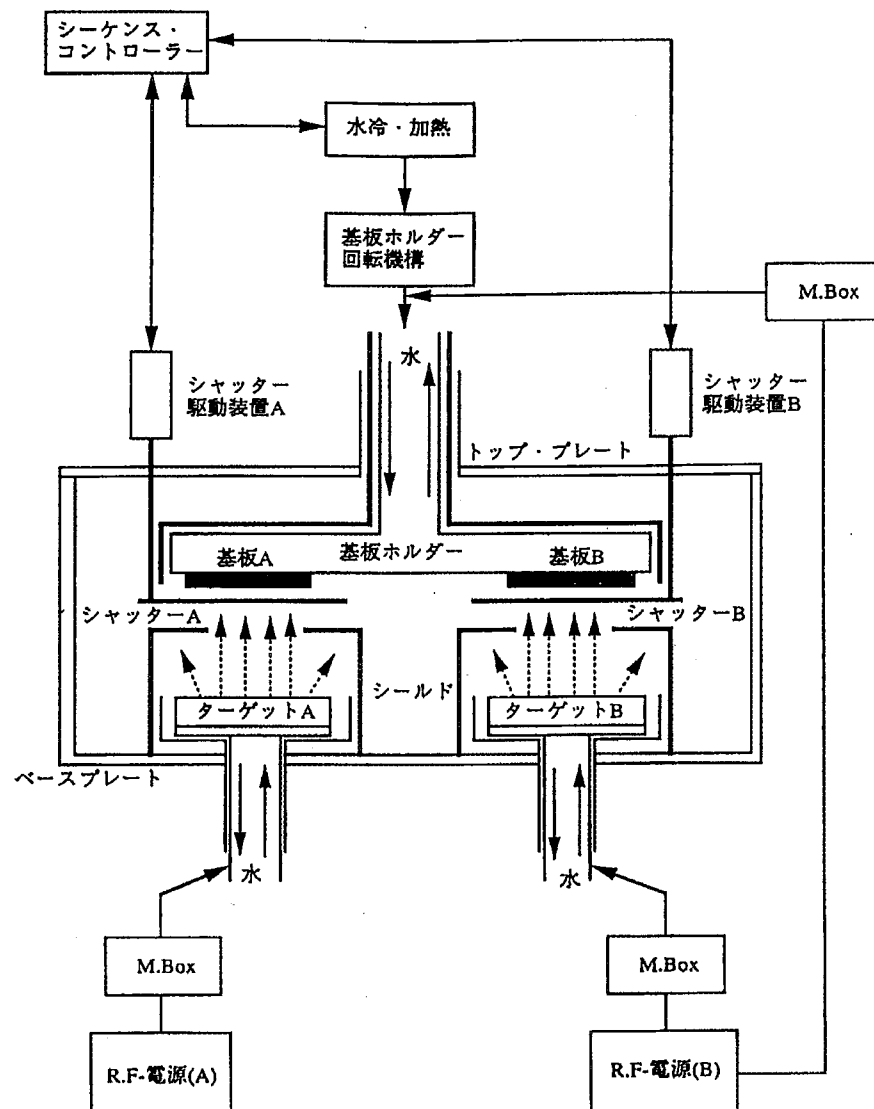


図 3.1: 二元高周波スパッタ装置の概念図。[49]

Aの上にあった基板がターゲットBの上にくるようになっている。一回転した時点で一周分積層され、ほぼ同じ組成の膜が同時に二枚作製される。また、二つの独立な高周波電源を用いており、それぞれスパッタリング電圧を独立に制御できる。ターゲットの上にはそれぞれシャッターがついており、基板ホルダーの回転と連動して開閉する。それぞれのシャッターの開閉時間を調節することで組成制御を行う。さらに、基板ホルダーはコイル状

の脱ガス用ヒーターによる加熱と、水冷が可能であり、これにより作製前の基板脱ガスと作製中の基板冷却とが可能になっている。スパッタガスは、一般にはArガスが用いられるが、本装置ではKrガスを用いた。これは、Arより分子量の大きいKrによってスパッタ粒子の運動エネルギーを少しでも減衰させ、膜面でのもぐり込みや拡散を小さくすることを目的としたことによる[22]。Krガスは、ボンベから自動圧力調整バルブを通り、チタンサブリーメーションポンプにより純化されてからチェンバーに導入される。

### 3.1.3 作製条件

表3.2にCo/Pt多層膜の作製条件をまとめた。多層膜作製に先立って、多層膜作製時と同条件で二時間ほど時間をかけて製膜した試料を作製し、膜厚計で積層厚を測定して単位時間当たりの蒸発量を算出した。この蒸発レートをもとにシャッター開閉時間を決定し、膜厚制御を行った。

表 3.2: Co/Pt多層膜の作製条件。

| 項目       | 条件                                    |
|----------|---------------------------------------|
| 基板       | ガラス(コーニング製7059, $t=0.3\text{mm}$ )    |
| 真空度      | $5 \times 10^{-8}\text{Torr}$         |
| 基板ベーク    | $350^\circ\text{C}$ で1時間hold          |
| ターゲット    | 単金属ターゲット<br>(純度 Co 99.95%, Pt 99.99%) |
| 予備スパッタ時間 | Co $\sim 3$ 時間以上、Pt $\sim 0.5$ 時間以上   |
| 入力電圧     | Co 60W, Pt 40W                        |
| スパッタガス圧  | Kr 20mTorr                            |
| バッファ層    | 室温基板上にPt 200Å                         |
| バッファアニール | $350^\circ\text{C}$ で1時間hold          |
| 多層膜作製温度  | 室温(水冷)                                |

一度ベークした室温ガラス基板上に200Å程度のPtの下地層(buffer layer)を蒸着させ、 $350^\circ\text{C}$ で1時間ほどアニール(anneal)を行う。特に決まった面指数が無いガラス基板上では、この操作によりPt原子が細密充填構造をとるように再配列が起こり、fcc(111)面を積

層面とする下地層が作られる。この下地層を室温までゆっくり冷却し、多層膜を作製する。光学実験が主となるため、光の染み込み深さを考えて多層膜構造部分の層厚が大体1000Å程度になるようにした。また、最上層をPtにして、酸化防止膜とした。このPt層の厚さは多層膜部分のPt層の厚さと同じである。

作製後直ちに、チェンバーから取り出し、一つは真空デシケーターに入れて放射光実験まで試料面に触れないように保管した。もう一つは、X線回折、Kerr効果測定および磁気トルク測定等の試料評価の実験に使用した。

## 3.2 試料評価装置

### 3.2.1 X線回折装置

直接的な試料評価の一つとしてX線回折による人工周期の算出を行った。装置はリガク(株)のRINT2000である。回転陽極型X線管(Cu K $\alpha$ 、 $\lambda=1.54187\text{\AA}$ )を線源として用いている。各多層膜試料に対し、小角領域( $2\theta=1^\circ \sim 20^\circ$ )と広角領域( $2\theta=30^\circ \sim 70^\circ$ )の測定を行った。

### 3.2.2 磁気トルク装置

#### トルク曲線の解釈

もう一つ直接的な試料評価として、トルク測定による磁気異方性の測定を行った。磁性体を磁場の中におくと、物質の磁気エネルギーが結晶の磁場に対する方向によって異なるために回転力をうける。例として、常磁性体<sup>4</sup>の場合を考えてみる。磁化を  $M$ 、磁場を  $H$ 、磁化率テンソルを  $\chi$  とすれば、磁気エネルギー  $F$  は、

$$F = - \int_0^H M \cdot dH = - \frac{1}{2} H \cdot \chi H, \quad (3.1)$$

と表される。したがって磁場が  $zx$  面内にある場合に発生するトルク  $L$  は、

$$L = - \frac{\partial F}{\partial \theta} = - \frac{1}{2} (\chi_z - \chi_x) H^2 \sin(2\theta), \quad (3.2)$$

<sup>4</sup>ここでの説明は、常磁性的に振る舞う場合にも当てはまる。

となることがわかる。ここで、 $\theta$  は磁場  $H$  と  $z$  軸との成す角である。(3.2) 式から、常磁性体のトルク曲線は、振幅が磁場の二乗に比例し周期が  $180^\circ$  の正弦曲線を描くことがわかる。この結果は本研究で用いている Co/Pt 多層膜の場合でも、明確な磁化容易軸や磁化困難軸が無く、 $M = \chi H$  が成り立つ場合にも当てはめることができる。したがって、(3.2) 式に従う場合を常磁性的であると解釈できる。

強磁性体の場合の磁気エネルギーは、

$$F = - \int_0^H M \cdot dH = -M \cdot H, \quad (3.3)$$

となる。したがって、面内 ( $x$  軸方向) に磁化のある場合のトルクは、

$$L = MH \cos \theta, \quad (3.4)$$

となり、面法線方向に磁化のある場合は

$$L = \text{sgn}(\theta - 90^\circ) MH \sin \theta, \quad (3.5)$$

となる。ここで、 $\text{sgn}(x) = x/|x| (x \neq 0)$ ,  $0 (x = 0)$  である。これらのようすを図 3.2 に模式的に示した。

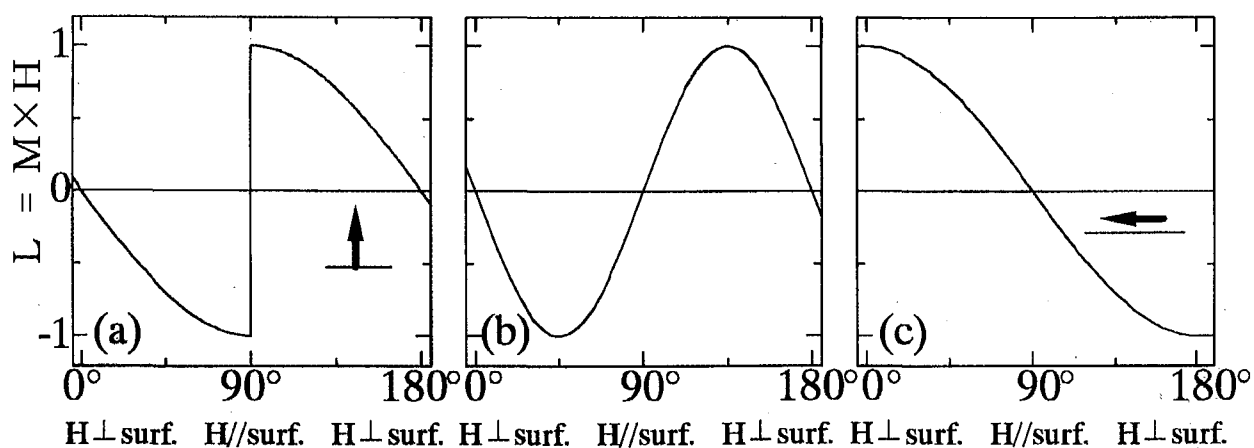


図 3.2: トルク曲線の模式図。(a) 垂直磁化 (b) 常磁性的 (c) 面内磁化

### 装置の構成

図3.3にトルク装置の構成図を示す。鉛直軸のまわりに回転できる電磁石の間に試料が置いてあり、試料を支える剛性率の高い石英の棒( $\phi 0.75\text{mm}$ )は上部から細い燐青銅の板で吊るしてある。磁場の回転によって生ずるトルクを、細い燐青銅の板と石英の棒の間にある引き戻しコイルに流れる電流値として読み取る。

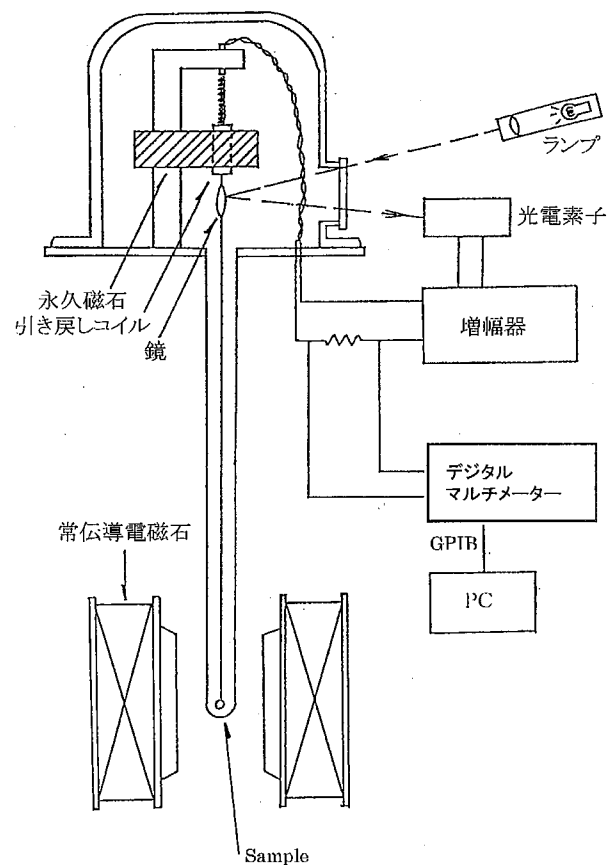


図 3.3: トルク装置の構成図。

可動部は図3.4のようになっている。引き戻しコイルの両脇に永久磁石のヨークを置く。投光器からの光が可動部に取り付けられた鏡で反射され、CdSの光電素子の中央部にあたるようにする。このとき、光電素子からの出力電圧と電子回路部のアナログ出力電圧を0V

になるようにする。試料にトルクが生じ回転を始めると、燐青銅で吊るされた可動部が同時に回転を始め、鏡で反射した光が図3.4の2あるいは3の状態<sup>5</sup>になると、光電素子の出力電圧が生じ、電子回路で増幅され、引き戻しコイルに電流が流れ磁場が発生する。このとき発生した磁場と両脇にあるヨーク内の磁場が常に引き合うように設定してあり、試料に生じたトルクと引き戻しコイルに生じた逆トルクがちょうどつり合うまで電流が流れる。この電流量は試料に生じたトルクと比例しているので、電子回路部でアナログ出力として取り出し、さらに電圧に変換をしてデジタルマルチメーターで測定する。この電圧をトルクの大きさに変換するには、予め磁気異方性のわかっている標準試料を用いる。本研究では定性的磁気異方性の測定に限定したので、標準試料の計測は行わなかった。

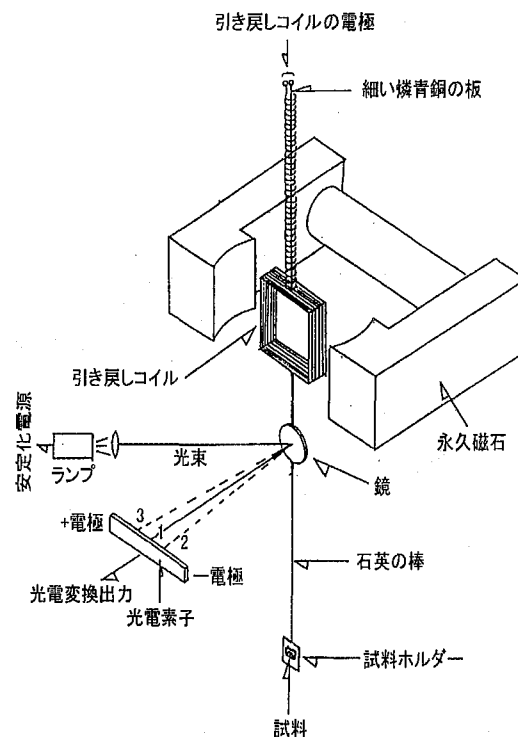


図 3.4: トルク装置の可動部。

<sup>5</sup>実際にはほとんど変位しない

### 3.2.3 レーザー領域の極力一効果測定

1.2節で述べたように Co/Pt 多層膜は 400nm(3.1eV) 近傍での磁気カー回転角が従来の磁気記録媒体の材料である TbFeCo に比べて大きいことが知られている。本研究で作製した試料がこの実験報告と大きく異なっていないことを確かめ、試料評価手段の一つとした。また、本研究では磁性層である Co 層の層厚を系統的に変化させている。このことに関連して、Geerts, Katayama らは Au/Fe/Au Wedge 膜、Au/Co/Au Wedge 膜を用いた 1.5eV~5eV の領域の磁気カー効果の磁性層厚依存性を測定し、Fe や Co の 3d 電子系に量子井戸準位 (QWS) が形成されると考えれば説明できるとしている [10, 61]。本研究で作製した一連の Co/Pt 多層膜でも同様な結果を期待して、上述の領域での磁気カー効果 (回転角, 楕円率) の測定を行った。測定装置は電総研片山先生所有の (株) 日本分光製 J-2500 を用いた。図 3.5 にブロック図、表 3.3 に測定条件を示す。

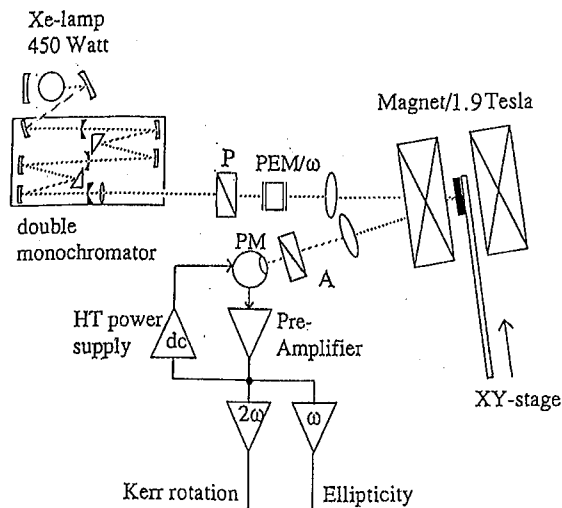


図 3.5: 可視領域の磁気光学効果測定装置のブロック図。(日本分光製 J-2500)

また、入射光のエネルギーを固定し、カー回転角の磁場依存性を測ることで磁気履歴に比例した物理量を測定できる。いわゆるカーループと呼ばれるもので、光学遷移の吸収端から離れた領域では、カー回転角が試料の磁化に比例することによる [62]。カーループか

表 3.3: 日本分光製 J-2500 での測定条件。

|         |                                                  |
|---------|--------------------------------------------------|
| 測定方式    | 円偏光変調法                                           |
| 光源      | 450W Xe lamp                                     |
| 測定エネルギー | 1.55eV~6.2nm(スペクトル測定時)<br>2.48eV(磁場依存性測定時)       |
| 分光器     | プリズム                                             |
| 入射角     | 約10°                                             |
| 磁場方向    | ファラデー配置                                          |
| 磁場強度    | -18.8kOe~+18.8kOe(磁場依存性測定時)<br>18.8kOe(スペクトル測定時) |
| 光検出器    | 光電子増倍管                                           |
| 測定感度    | 0.1~0.5mdeg.                                     |

ら、例えば飽和磁場や保持力といった物理量が得られる。

### 3.3 内殻吸収磁気円二色性の測定

内殻吸収磁気円二色性(内殻MCD)の測定は、すべて高エネルギー物理学研究所放射光実験施設にて行った。40~100eVの真空紫外領域の測定をフォトンファクトリー(PF)のビームライン BL-28Aで行い、760~820eVの軟X線領域の測定をトリスタン入射蓄積リング(AR)のビームラインAR-NE1Bで行った。以下では、それぞれのビームラインでの測定方法を説明する。

#### 3.3.1 真空紫外(VUV)領域での反射MCD測定

真空紫外(Vacuum Ultraviolet=VUV)領域とは、酸素による吸収が強まる約200nm(約6eV)から、垂直入射反射率の著しく低下する約12nm(約100eV)までの領域である。この領域の酸素の吸収係数と、金属の中でも反射率が高く光学系のコーティング材として使われることの多い金の反射率を図3.6に示す[50]。また参考として光のエネルギーと各領域の呼称を図3.7に示す。

VUV領域では、Co  $M_{2,3}(3p_{1/2,3/2} \rightarrow 3d : \sim 60\text{eV})$ , Pt  $N_{6,7}(4f_{5/2,7/2} \rightarrow 5d : \sim 75\text{eV}, \sim 72\text{eV})$

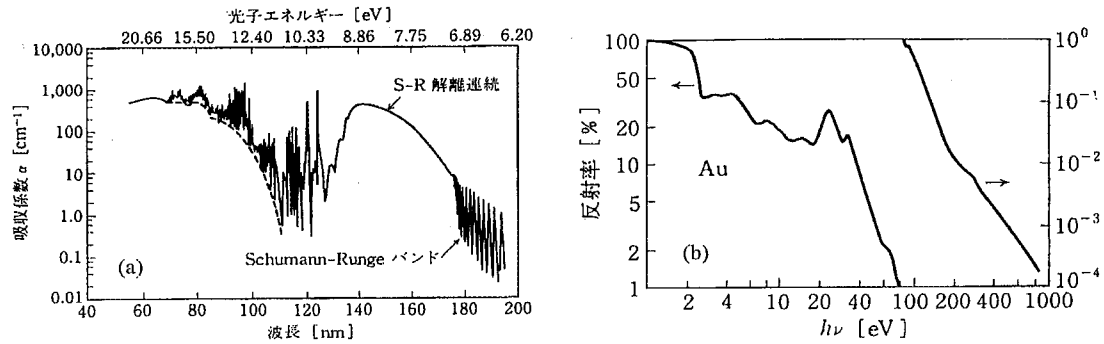


図 3.6: (a) 酸素の吸収係数(b) 金の反射率。[50]

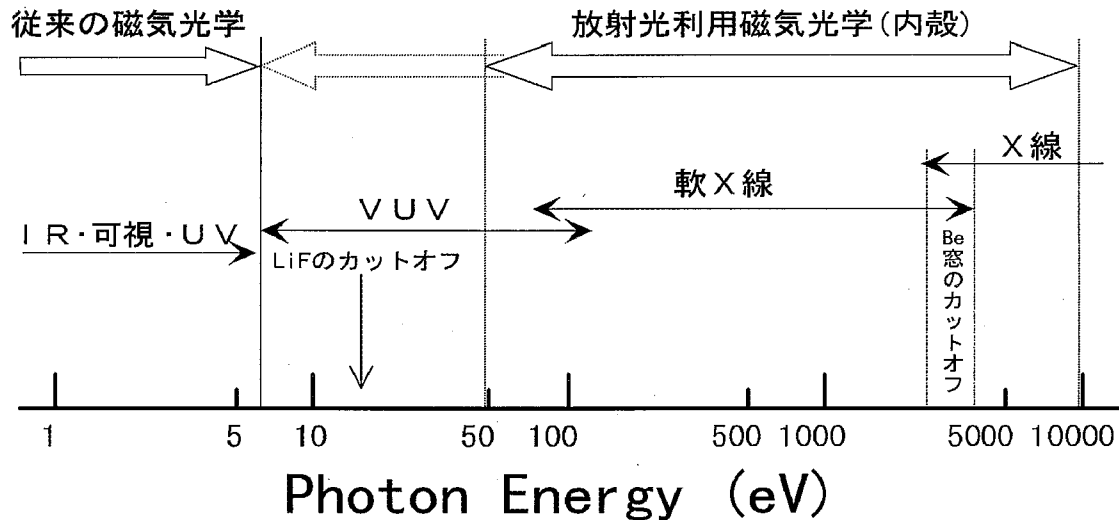


図 3.7: 光のエネルギーと各領域の呼称。

および Pt  $O_{2,3}(5p_{1/2,3/2} \rightarrow 5d: \sim 67\text{eV}, \sim 53\text{eV})$  の各吸収端が内殻MCDの測定にかかることになる。本研究では、二種類の磁気光学装置を用いて実験を行った。一つは、超伝導マグネットを用いた直流的な測定であり、もうひとつは交流マグネットを用いた磁場変調測定である。前者はMCDシグナルの大きな試料やFeなどの強磁場を必要とする試料の測定、後者はより高いS/Nを要求する測定やMCDシグナルの小さい試料の測定に有効である。どちらの測定法でも基本的に同じである。以下ではまず、BL28Aについて簡単に説明し、各

マグネットによるMCD測定の方法を説明する。

### BL28A

BL28Aの概略を図3.8に示す。このビームラインはいわゆる挿入光源によるシンクロトロン放射を用いている。2.5GeV(陽)電子蓄積リングの偏向電磁石B28とB27の間にある3.55mの直線部に設置された円偏向アンジュレーターEMPW#28[51]より出射される円偏光放射光を光学系で分光して用いる。光学系[52]は回折格子と六個のミラーから構成され

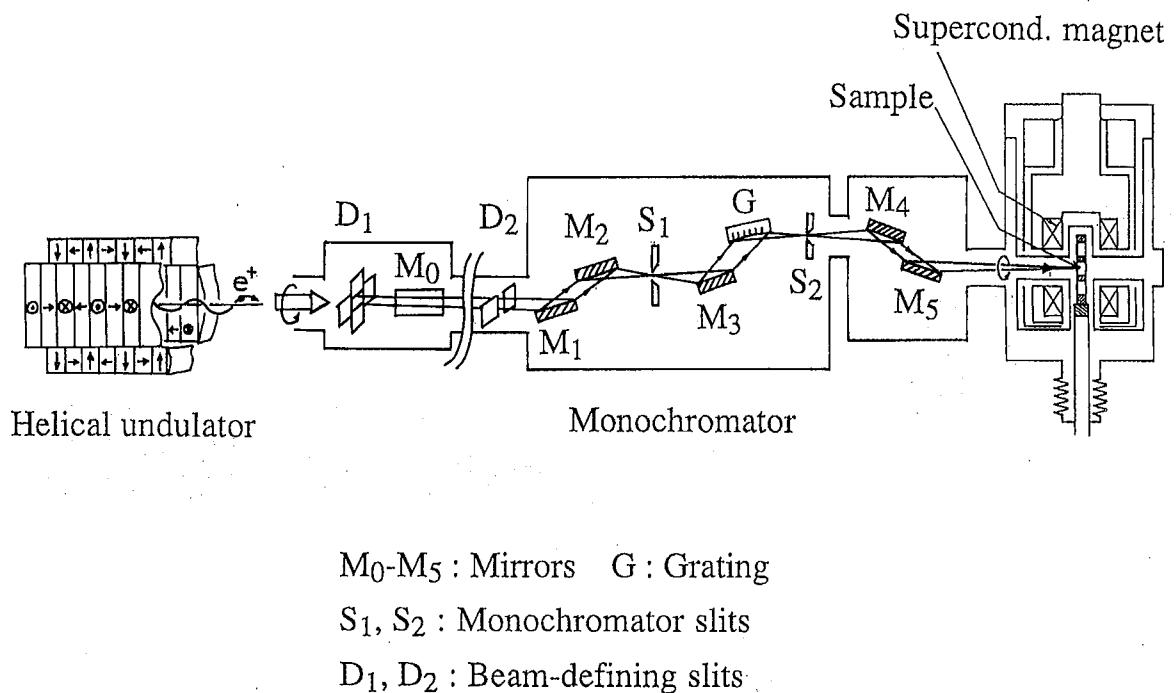


図 3.8: BL28A の概略図

ており、回折格子の上下流にあるスリットが直接に実験上の光のエネルギー分解能を決定している。

円偏光アンジュレーター光の放射強度や円偏光度はエネルギーに強く依存している。アンジュレーターの中で螺旋運動をした(陽)電子から放射される光は、ドップラー効果に相対

論的効果が加わってアンジュレーターの周期長( $\lambda_u$ )よりも極端に短い波長( $\lambda_1$ )に強度ピークをもつスペクトルとなる。両者は簡単な計算から、次式の関係で結びつけられることがわかる<sup>6</sup>。

$$\lambda_1 = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2}(1 + K^2 + \theta^2\gamma^2), \quad (3.6)$$

$$\text{ここで } \gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - (\frac{v}{c})^2}} = \frac{E}{mc^2} = 1957E(\text{GeV})$$

$$K = \frac{eB\lambda_u}{2\pi mc} = 93.4B(\text{T})\lambda_u(\text{cm})$$

$\theta(\ll 1)$  は放射方向からの偏角

(3.6) 式から、アンジュレーターの磁極の間隔を変化させて磁場強度をかえると、 $\lambda_1$ が変化することがわかる。アンジュレーターからの放射強度や円偏光度は理論的に計算可能である [53, 54]。しかし実際の測定で用いる光は偏向電磁石からの光が混入しており、さらに光学系で反射・回折を繰り返すため、特に、実効的な円偏光度は小さくなると予想される。図 3.9 に BL28A 出射光の円偏光度および放射強度の測定結果を示す [55]。図 3.9 の測定では、(3.6) 式で表されるアンジュレーター放射の強度ピーク ( $h\nu_1$ ) が 75 eV になるようにアンジュレーターギャップをセットしてある。(a) は円偏光度  $P_c$  の測定値と理論値を比較し、(b) はアンジュレータースペクトルの実測値と理論値を比較している。 $P_c$  の測定値 (黒丸) は、 $h\nu_1$  の近傍およびその低エネルギー側約 10 eV の範囲において、90% 以上の高い値を示すが、この領域から離れるにつれて急激に低下する。実測した  $P_c$  は、全領域でアンジュレーターの特性だけを考慮した場合 (計算 1) より低い値を示している。ビームラインの光学素子 (合計七個) での反射・回折を考慮した場合 (計算 2) も高エネルギー側と低エネルギー側での不一致が残っている。最終的に偏向電磁石からの放射も考慮した場合に実測値と一致する。したがって、BL28A での実験では、 $P_c$  のエネルギー依存性を十分考慮に入れて行うことが重要である。特に、MCD シグナルが期待される領域では、高い  $P_c$  が得られるように  $h\nu_1$  をセットする必要がある。この点については、4.2.1 節で具体的に述べる。さらに、放射強度も  $h\nu_1$  から離れるにつれて急激に減少することにも注意を払う必要がある。

<sup>6</sup>(3.6) 式に表れる  $K$  が  $K \lesssim 1$  の場合に成り立つ

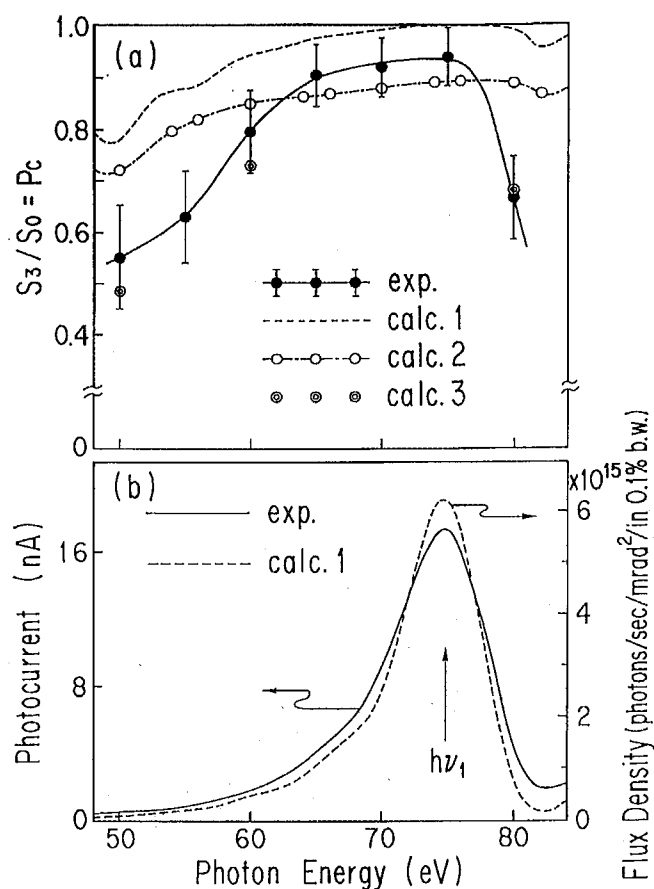


図 3.9: BL28A の円偏光度(a) および放射強度(b)。calc.1 はアンジュレーター放射だけを考慮し、calc.2 は光学系も考慮に入れた。calc.3 はさらに偏向電磁石からの放射も考慮した。アンジュレーターの第一ハーモニックを  $h\nu_1$  で示した。[55]

### 超高真空超伝導マグネットによる測定

2.1節で説明したように、MCDの測定は入射円偏光のヘリシティを反転させながら行うことになる。しかし、挿入光源でこの操作を頻繁に行うことは、他のビームラインへの影響などもあり、事実上困難である。そこで、実際は光のヘリシティを反転させる代わりに、試料にかける磁場の向きを反転させて測定を行った。

図3.10に本研究で用いたスプリット型超高真空超伝導マグネットの断面図を示す[56]。試料はゲートバルブを通じて下部から $\sim 10^{-10}$ Torr程度の超高真空チェンバー内部に導入さ

れる。正面のビームダクトから入った左円偏光( $\sigma_-$  偏光)が試料にあたり、光電子増倍管の取り付けであるビューポートへ反射される。このときの試料面上での光の入射角は $4.3^\circ$ である。ビューポートの内側には蛍光剤としてサリチル酸ナトリウムを塗布してあり、反射

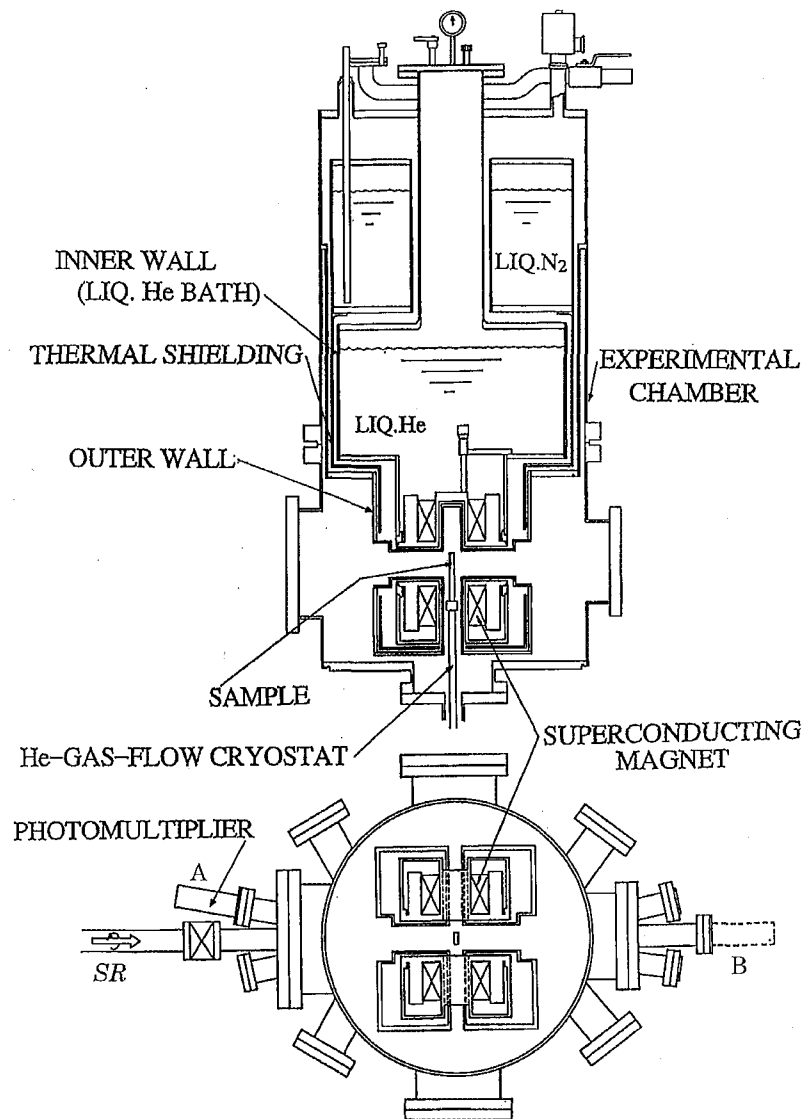


図 3.10: 超高真空超伝導マグネットの断面図。[56] 試料で反射された光をAの位置にセットした高磁場用光電子増倍管(Photomultiplier = フォトマル)で測定する。また、試料を降ろして入射路の反対側に光をあて、同じフォトマルでサリチル酸ナトリウムの蛍光の入射光依存性を測定する。(測定A)/(測定B)により反射率が求まる。

された真空紫外光はここで可視光に変換されてビューポート外部へ取り出される。この光をビューポートに取り付けた高磁場用光電子増倍管(浜松フォトニクス H2611)で検出し、電流値をデジタル微少電流計(Advantest TR8652)で計測する。

真空紫外光に対するサリチル酸ナトリウムの発光効率は、ゆるやかではあるがエネルギー依存性がある。これを補正するために、入射路と正反対の位置に同じようにサリチル酸ナトリウムを塗布したビューポートを取り付け、直接入射光をあててスペクトル測定を行った。このスペクトルで先の反射スペクトルを除算することにより、サリチル酸ナトリウムの入射光エネルギー依存性を補正することができる。さらに、入射光エネルギーに依存するものとして図3.9(b)に示した光強度がある。これは図3.8に示した後置鏡 $M_4$ の光電効果による電流を直接デジタル微少電流計(TR8652)で計測する。図3.9(b)に実線で示した実験結果がそれである。先のサリチル酸ナトリウムの補正を行ったスペクトルを、さらにこの後置鏡電流のスペクトルで除算することで、試料にあたる光の強度を規格化したことになる。

磁場は光の進行方向に対し平行か反平行に印加する(ファラデー配置)。Co/Pt多層膜に対しては $\pm 2$ T印加した。この強度で十分に飽和することを確認している(図4.4参照)。磁場反転による光電子増倍管の感度変化は0.1%以下である。

デジタル微少電流計のデータ収集、分光器の駆動などはPC9801をコントローラーとする GPIB システムで行った。アンジュレーターピークを適当にセットして、 $+2$ T と  $-2$ T のスペクトルそれぞれ数回測定をし、各磁場強度での平均とその差を平均で割ったものをそれぞれ反射率および磁気円二色性のスペクトルとした。

### 交流マグネットによる測定

もう一つの MCD 測定チェンバーである交流マグネット[57]による測定法を説明する。このシステムは1%以下の小さなMCDシグナルを測定するためのものである。Co/Pt多層膜では10%程度もの大きなものであるが、スペクトルに表れる微細な構造を調べるにはこの程度のS/Nが必要である。

測定の原理を簡単に説明する。印加磁場を交流的に振動させれば、試料内の磁化も同周

期で振動し、その結果反射率も振動する。反射率の時間変化を

$$R(t) = R_{\text{DC}} + R_0 e^{i\omega t}, \quad (3.7)$$

と表せば、最大値( $R_+ = R_{\text{DC}} + R_0$ )と最小値( $R_- = R_{\text{DC}} - R_0$ )が、磁場最大のときの反射率を与えてくれる。MCDは

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R_+ - R_-}{(R_+ + R_-)/2} = \frac{2R_0}{R_{\text{DC}}}, \quad (3.8)$$

となる。(3.8)式から、(3.7)式に従って振動する反射率の振幅と直流成分が測定すべき物理量であることがわかる。

測定は超伝導マグネットの場合と同様にPC9801をコントローラーとする GPIB システムを中心に行った。図3.11に構成図を示す。発振器で磁場を振幅0.62T, 周期5Hzで正弦的に

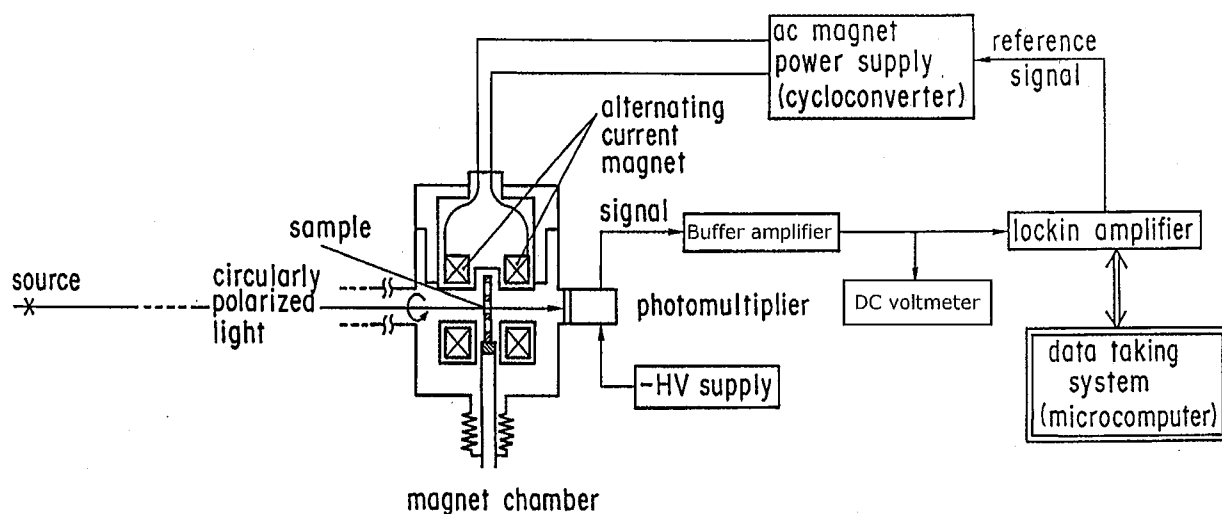


図 3.11: 交流マグネットを用いたMCD測定系の構成図。反射測定の場合は図3.10のAの位置にフォトマルを配置する。

振動させる。光電子増倍管の電流値をバッファアンプで電圧に変換し、二路にわけて一方をデジタル直流電圧計(TR8652)に、もう一方をアナログロックインアンプ(NF LI-575)につなぐ。発振器のシグナルを参照信号としてロックインアンプに取り込むことで、(3.8)

式に表れる交流的に振動する反射率の振幅  $R_0$  が測定できる<sup>7</sup>。また、直流成分  $R_{DC}$  は直流電圧計で測定される。

### 3.3.2 軟X線(SX)領域での光電子全収量MCD測定

軟X線(SX)領域とは、VUV領域の高エネルギー側(約100eV)から硬X線領域の低エネルギー側(約4keV)までのエネルギー領域である。(図3.7参照)。X線との境界は、蓄積リングとビームラインを真空的に隔てているBe窓による吸収のために光の強度が急激に弱まる場所(≒4keV)にある。ただ、これらの境界はそれほど厳密なものではない。

図3.6(b)に金を例として示したように、この領域では金属でも反射率は極端に小さい。これは、この領域での屈折率( $n$ )および消衰係数( $\kappa$ )が、 $\kappa \ll n \approx 1$ であることによる。そこで、この領域では光電子全収量法による測定を行った。図3.12にこの測定法の原理を示す。試料に光を照射すると、光電効果により電子が飛び出す。詳しい考察は付録Cに示す

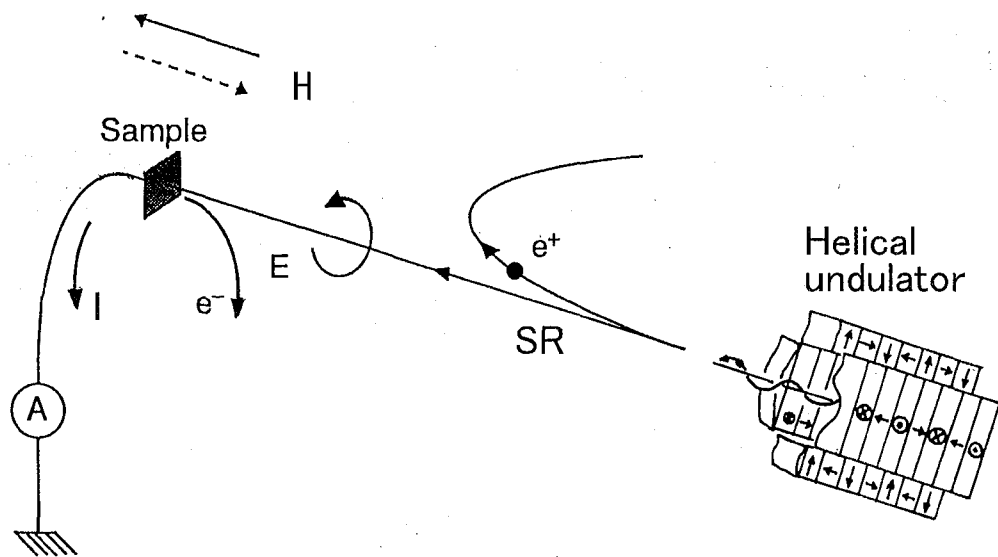


図 3.12: 光電子全収量法の原理。

が、この光電子の放出量はほぼ試料の吸収係数に比例していると考えられる。したがって、

<sup>7</sup>実際には実効値が測定されるので最大値に直すには $\sqrt{2}$ 倍する必要がある

試料を接地し、その間に検流計を置いて試料に流れ込む電流を測れば吸収係数を測定したことになる。入射円偏光のヘリシティを外部磁場を反転させながらこの測定を行えば、MCD測定ができる。

測定を行ったビームラインAR-NE1B[58]の光学系を図3.13に示す。このビームラインは、BL28Aと同様に円偏光アンジュレーターEMPW#NE1B[51, 59]より出射される円偏光放射光を分光して用いる。やはりこのビームラインでも光のヘリシティを反転させるので

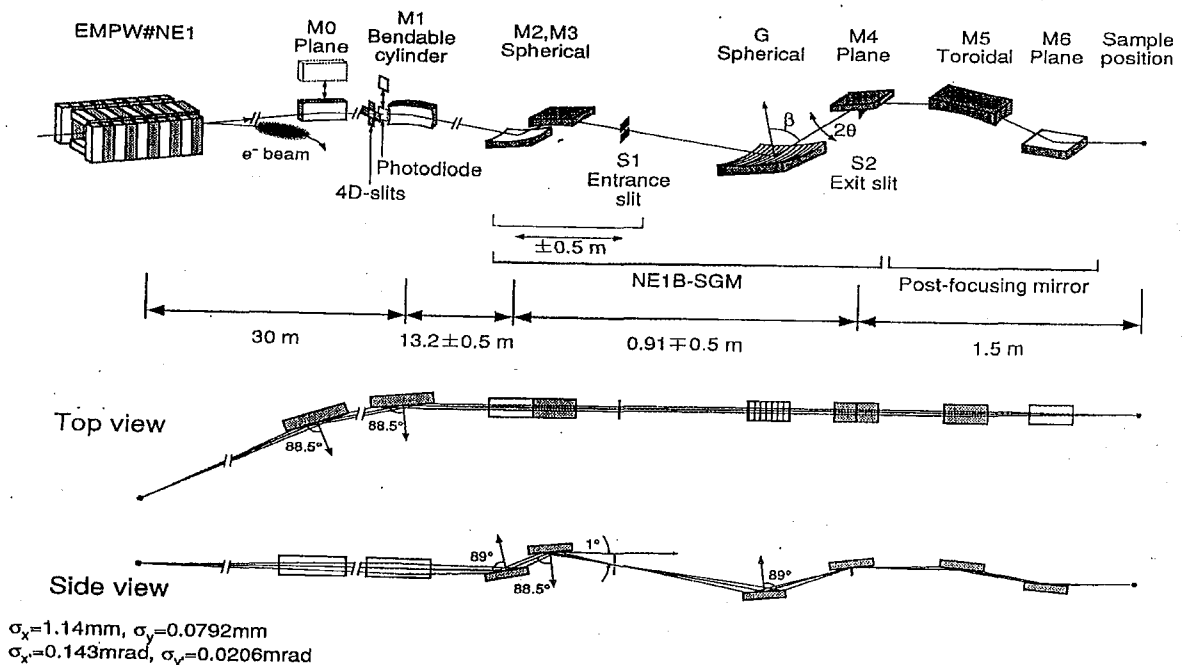


図 3.13: AR-NE1Bの光学系。[58]

はなく、試料に印加する磁場を反転してMCD測定を行った。図3.14にMCD測定に用いた永久磁石を示す[60]。B, B'で示した位置に5×5mmの孔があり、ここを光が通る。Aで示した間隙に上から試料を降ろし、B, B'の位置で光が当たる。B, B'の位置で磁場は逆向きになっており、永久磁石を左右に振りながらMCD測定を行った。磁場は約±1.1T印加され、各光子エネルギーで磁場の極性を反転させながらスペクトル測定を行った。試料ホルダーはチェンバーから絶縁され、信号線でデジタル電流計(TR8652)とつなぎ、試料に流れ

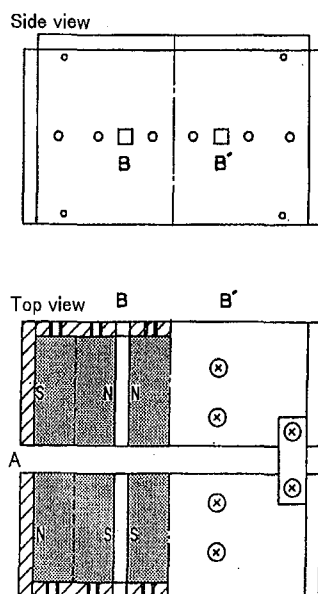


図 3.14: NE1B の実験で用いた永久磁石の簡略図。B, B' に示した位置に 5×5mm の孔があり光が通る。A で示した間隙に上から試料を降ろし、B, B' の位置での光が当たる。B, B' の位置で磁場は逆になっており、全体を左右に振りながら MCD 測定を行う。

込む電流を測定する。アンジュレーター放射の強度は、測定チェンバー直前のビームダクト中においた金メッシュからの光電効果による電流値がこれに比例する物理量であるとして測定した。このアンジュレータースペクトルで、試料に流れ込む電流値を規格化し、吸収係数に比例するものとした。BL28A の場合と同様に、PC9801 をコントローラーとする GPIB システムを用いた。

### 3.3.3 4eV～45eV の反射率測定

BL28A で測定した反射率および反射 MCD のそれぞれのスペクトルを Kramers-Kronig 解析 (K-K 解析) により誘電率に結び付けるには、低エネルギー側の反射率が必要になる。K-K 解析については付録 B に述べる。

4eV～45eV の反射率を BL11C で測定した。ビームラインの光学系を図 3.15 に示す。このビームラインは偏向電磁石からの放射光を用いている。前置鏡 (M0, M1) でビームを実験ホールの二階部分へ跳ね上げ、ローランド半径 1m の瀬谷・波岡型分光器 (SSN) で分光し、

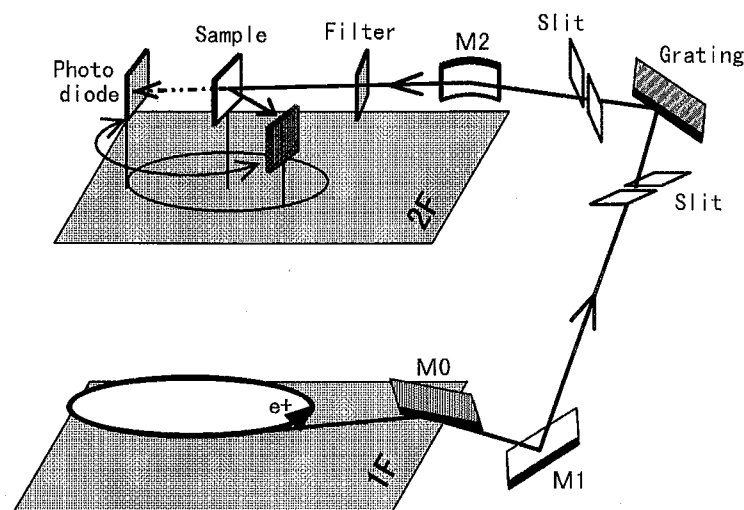


図 3.15: BL11Cでの反射率測定のパック図。

後置鏡 (M2) で測定チェンバーへ導入する。反射率測定チェンバーに光を導入する前に分光器の高次光や迷光を除去するために、エネルギー域に応じて各種のフィルターを用いる必要がある。LiF を 11.5eV 以下、石英を 7.5eV 以下を通すローパスフィルターとして用いた。さらに、25eV 以下の測定では、高次光の影響を押さえる効果のあるラミナー型回折格子を用いた。測定は、いくつかの領域に分けて、フィルターと回折格子を適当に組み合わせて行った。表 3.4 に測定領域とフィルターおよび回折格子の組み合わせを示す。

表 3.4: BL11C の測定領域とフィルターおよび回折格子

| 測定領域    | フィルター | 回折格子             |
|---------|-------|------------------|
| 4~8eV   | 石英    | G2(ラミナ型)         |
| 5~12eV  | LiF   | "                |
| 7~25eV  | なし    | "                |
| 15~40eV | なし    | G3(ブレード型、Au コート) |

検出器にはシリコンフォトダイオードを用いた。検出器は試料の位置を軸中心として、反射位置および透過位置 (ストレート位置) に移動可能である。反射強度および入射強度を同

じ検出器で測定することで、正確な反射率測定が可能になる。検出器で発生した電流をデジタル微小電流計 (TR8652) で読み取り、PC9801 による GPIB システムで測定を行った。

## 第4章

# 実験結果

### 4.1 試料評価

作製した多層膜試料は10個である。Ptの層厚を10ML<sup>1</sup>で一定にし、Coの層厚を2MLから10MLまではほぼ1MLずつ増加させ、さらに、20MLと38MLの試料を作成した。ここで、1MLの層厚はCoとPtそれぞれに対し、1.54Åと1.7Åである。これは次のように求める。Ptの下地層はfcc構造をとっていると考えられ、多層膜試料全体も概ねこの構造をとっていると予想される。室温での $\beta$ -Co(fcc)<sup>2</sup>とPt(fcc)の格子定数はそれぞれ、3.55Å、3.92Åである[64]。積層面は(111)面である。したがって、面間隔は格子定数に $\sqrt{3}/4$ を乗じた値となる。

Co/Ptの系では、磁性層もしくは非磁性層の層厚にしたがって振動的に変化する層間交換相互作用は見出されておらず[65]、Ptの層厚によって物性が著しく変化する可能性は少ないといえる。したがって、Ptの層厚を10MLとした。Coの層厚については、磁気異方性が増加する層厚が7Å~12Å程度と報告されているため[19, 23, 35, 63]、その境域をカバーするようにした。また、光の染み込み深さなどを考慮しても十分にバルク的であると思われる膜厚の領域として、20MLと38MLの二つを作製した。

---

<sup>1</sup>ML = monolayer

<sup>2</sup>Coは室温では通常  $\alpha$ -Co(hcp) となる。

### 4.1.1 X線回折の結果と人工周期の計算

X線回折の結果を図4.1と図4.2に示す。図4.1は小角散乱の測定結果であり、図4.2は広角散乱の結果である。どちらの回折像とも、Co層厚の変化に伴い系統的な変化を示している。両方の測定結果から、付録Dに示した方法で人工周期 $D$ を計算した。測定値の誤差は、いくつかの回折次数に対する計算結果のばらつきから求めた。さらに、広角散乱の基本回折ピーク位置(0で示した)から多層膜構造の平均格子定数 $a_{ave}$ (測定)を求め、これを計算値と比較した。計算値は、CoとPtの積層数の比を考慮してそれぞれの単結晶での格子定数を平均したものであり、界面での格子定数の違いによるミスフィットは考慮していない。図4.2で全試料に見られる $2\theta=40^\circ$ の回折ピークは $200\text{\AA}$ のPtバッファ層によるものである。表4.1に計算結果をまとめた。この表からわかるように、設計値 $[\text{Co}(2\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{40}$ と

表 4.1: X線回折の結果から得られた構造および平均格子定数( $a_{ave}$ )

| 設計値                                                    | 測定値                                                                       | [ ] <sub>x</sub> でxは積層周期数 |                    |
|--------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|---------------------------|--------------------|
|                                                        |                                                                           | $a_{ave}$ (理論)            | $a_{ave}$ (測定)     |
| $[\text{Co}(2\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{40}$  | $[\text{Co}(2.44\pm0.61\text{ML})/\text{Pt}(14.4\pm3.60\text{ML})]_{40}$  | $3.8583\text{\AA}$        | $3.9032\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(3\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{40}$  | $[\text{Co}(3.09\pm0.04\text{ML})/\text{Pt}(10.3\pm0.13\text{ML})]_{40}$  | $3.8346\text{\AA}$        | $3.8726\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(4\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{40}$  | $[\text{Co}(4.02\pm0.18\text{ML})/\text{Pt}(10.1\pm0.44\text{ML})]_{40}$  | $3.8143\text{\AA}$        | $3.8443\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(6\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{35}$  | $[\text{Co}(5.85\pm0.33\text{ML})/\text{Pt}(9.75\pm0.55\text{ML})]_{35}$  | $3.7813\text{\AA}$        | $3.8507\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(7\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{35}$  | $[\text{Co}(6.99\pm0.03\text{ML})/\text{Pt}(9.98\pm0.04\text{ML})]_{35}$  | $3.7676\text{\AA}$        | $3.8263\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(8\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{30}$  | $[\text{Co}(7.68\pm0.06\text{ML})/\text{Pt}(9.61\pm0.07\text{ML})]_{30}$  | $3.7556\text{\AA}$        | $3.8129\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(9\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{30}$  | $[\text{Co}(8.90\pm0.26\text{ML})/\text{Pt}(9.89\pm0.29\text{ML})]_{30}$  | $3.7447\text{\AA}$        | $3.8022\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(10\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{20}$ | $[\text{Co}(9.58\pm0.08\text{ML})/\text{Pt}(9.58\pm0.08\text{ML})]_{20}$  | $3.7350\text{\AA}$        | $3.7811\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(20\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{20}$ | $[\text{Co}(19.54\pm0.30\text{ML})/\text{Pt}(9.77\pm0.15\text{ML})]_{20}$ | $3.6733\text{\AA}$        | $3.6992\text{\AA}$ |
| $[\text{Co}(38\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{15}$ | $[\text{Co}(37.45\pm2.39\text{ML})/\text{Pt}(9.88\pm0.63\text{ML})]_{15}$ | $3.6271\text{\AA}$        | $3.6329\text{\AA}$ |

$[\text{Co}(38\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_{15}$ の二つで設計値からの誤差がやや大きいですが、これらも含めて測定値はほぼ設計値通りになっていることがわかる。以下では、設計値 $[\text{Co}(x\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})]_y$ の試料を、簡便のため $x\text{ML}$ の試料とか、単に $x\text{ML}$ と呼ぶことにする。また、fcc(111)面を仮定して算出した $a_{ave}$ は、理論値から0.1~1.5%程大きい程度である。したがって、完全なエピタキシャル成長は望めないとしても、fccの(111)面が成長面である仮定は正しい。

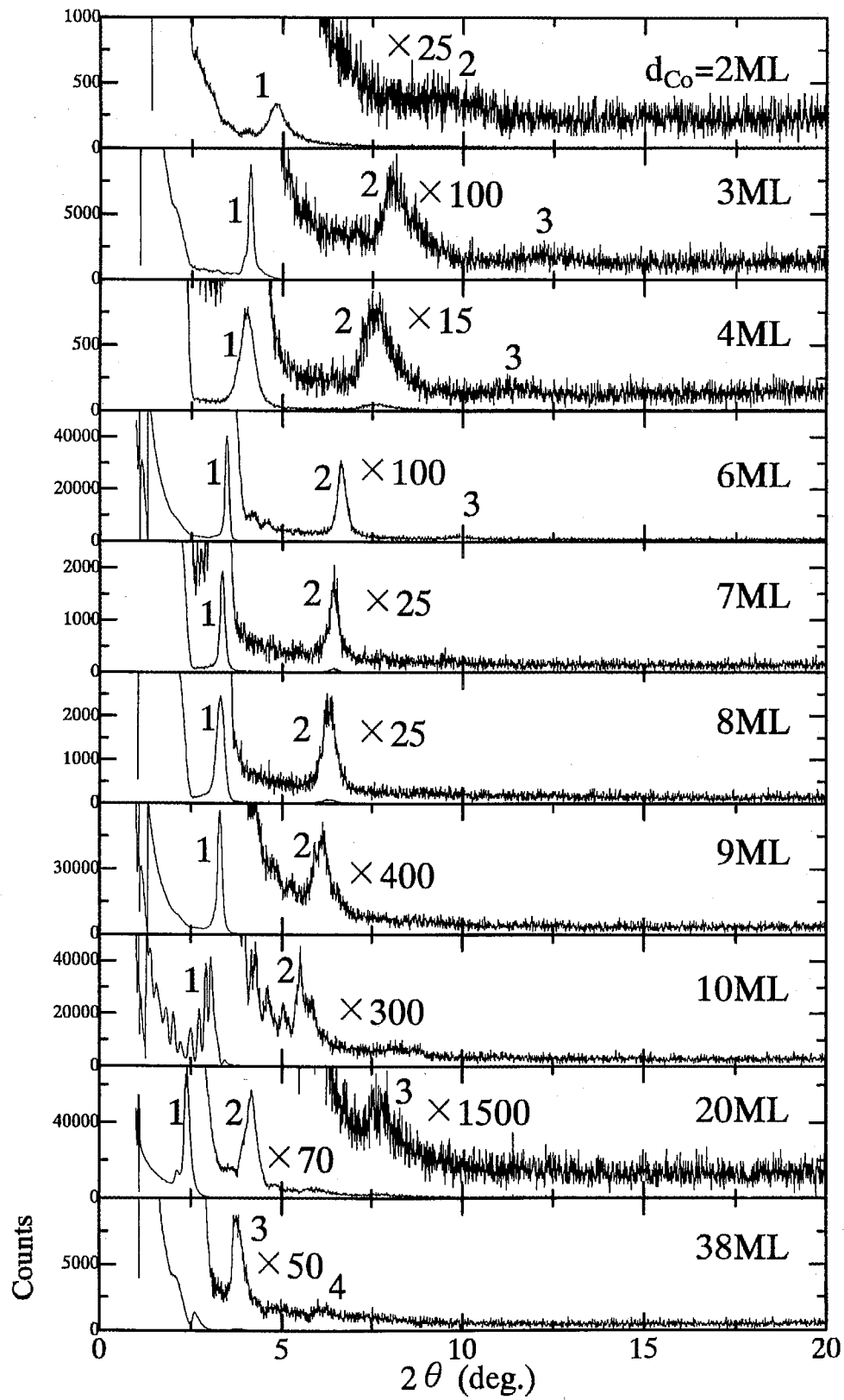


図 4.1:  $\text{Co}(x\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})$  の小角 X 線回折の実験結果。(ピーク位置に示した数字は回折次数を示す。)

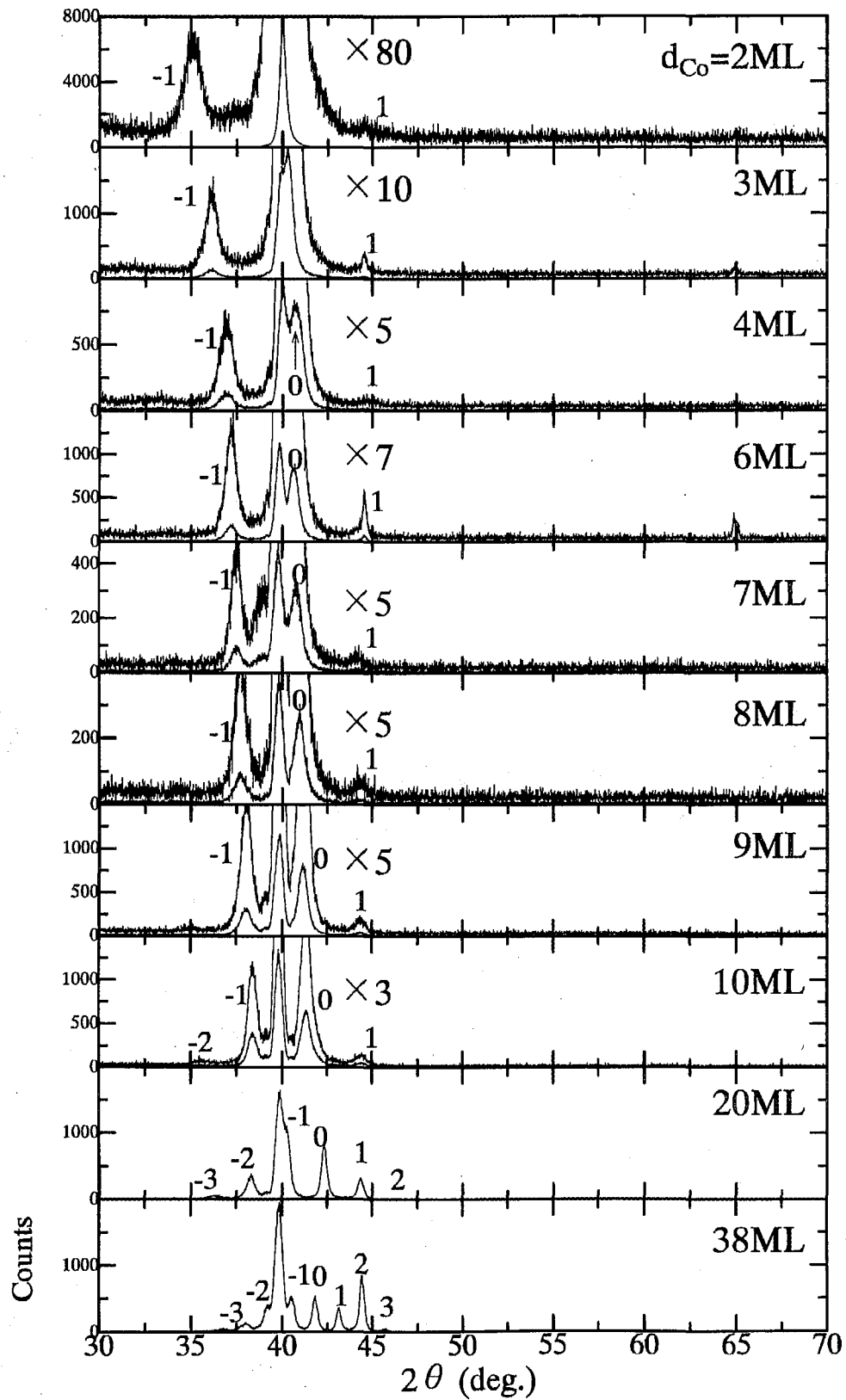


図 4.2:  $\text{Co}(x\text{ML})/\text{Pt}(10\text{ML})$  の広角 X 線回折の実験結果。(ピーク位置に示した数字はメインピーク (0) とサテライトピークの回折次数。) 全試料で見られる  $2\theta=40^\circ$  の回折ピークは  $200\text{\AA}$  の Pt バッファ層によるものである。

測定値に示した各層厚の誤差が小さいことと、図4.1、図4.2ともに高次の散乱ピークが比較的明瞭に確認されることから、境界面のはっきりとした人工周期構造をとっていると考えて良い。また、 $a_{ave}$  の測定値と理論値のずれが小さいことから、性質の良い結晶構造を組んでいると判断される。

#### 4.1.2 磁気異方性の変化

図4.3にトルク測定の結果を示す。縦軸は任意でかつ試料ごとに異なる。図3.2に示した理想的なトルク曲線と比較すると、2MLから38MLへCoの層厚が増えるにしたがって、垂直磁化膜から常磁性的な振る舞いを示す中間層厚、そして面内磁化膜と変化している様子がわかる。はっきりとした垂直磁気異方性は2, 3, 4MLの三つの試料で現れている。10ML以上が面内磁気異方性を示す。中間の層厚の試料は、印加する磁場強度で振る舞いが異なる。磁場強度を上げて8kOeにすると、6,7MLはどちらかといえば垂直磁気異方性を有するようになり、9MLは逆に面内磁気異方性を有するようになる。8MLは8kOeではマルチドメイン構造をとるようになる。

この結果から、Co/Pt多層膜は自発的な異方性という意味では、4ML(6.2Å)以下で垂直磁気異方性を持ち、10ML(15.4Å)以上で面内磁気異方性を持つようになる。この結果は他の実験報告で示された値と同様の傾向である[23]。

#### 4.1.3 極カー効果、ヒステリシス

図4.4にカー回転角の磁場依存性を示す。光学遷移の吸収端から離れた領域では、カー回転角が試料の磁化の磁場方向成分に比例する[62]ことから、この図はそのまま磁化曲線と解釈して差し支えない。(ただし、磁化曲線の場合は $H > 0$ のとき $M > 0$ となるので、図4.4とは縦軸の符号が逆になる。また、反磁場補正は行っていない。)

Co層の薄い試料(2~6ML)は図4.3で示したように自発磁化の方向と外部磁場の方向とが一致しているために、比較的弱い磁場で飽和に達している。Co層厚の増加に伴って飽和磁場の大きさが増大していき、38MLでは約14kOeで飽和に達する。回転角すなわち磁化の飽和値はCo層厚の増加とともに大きくなっていくが、これは磁性層であるCo層の占める

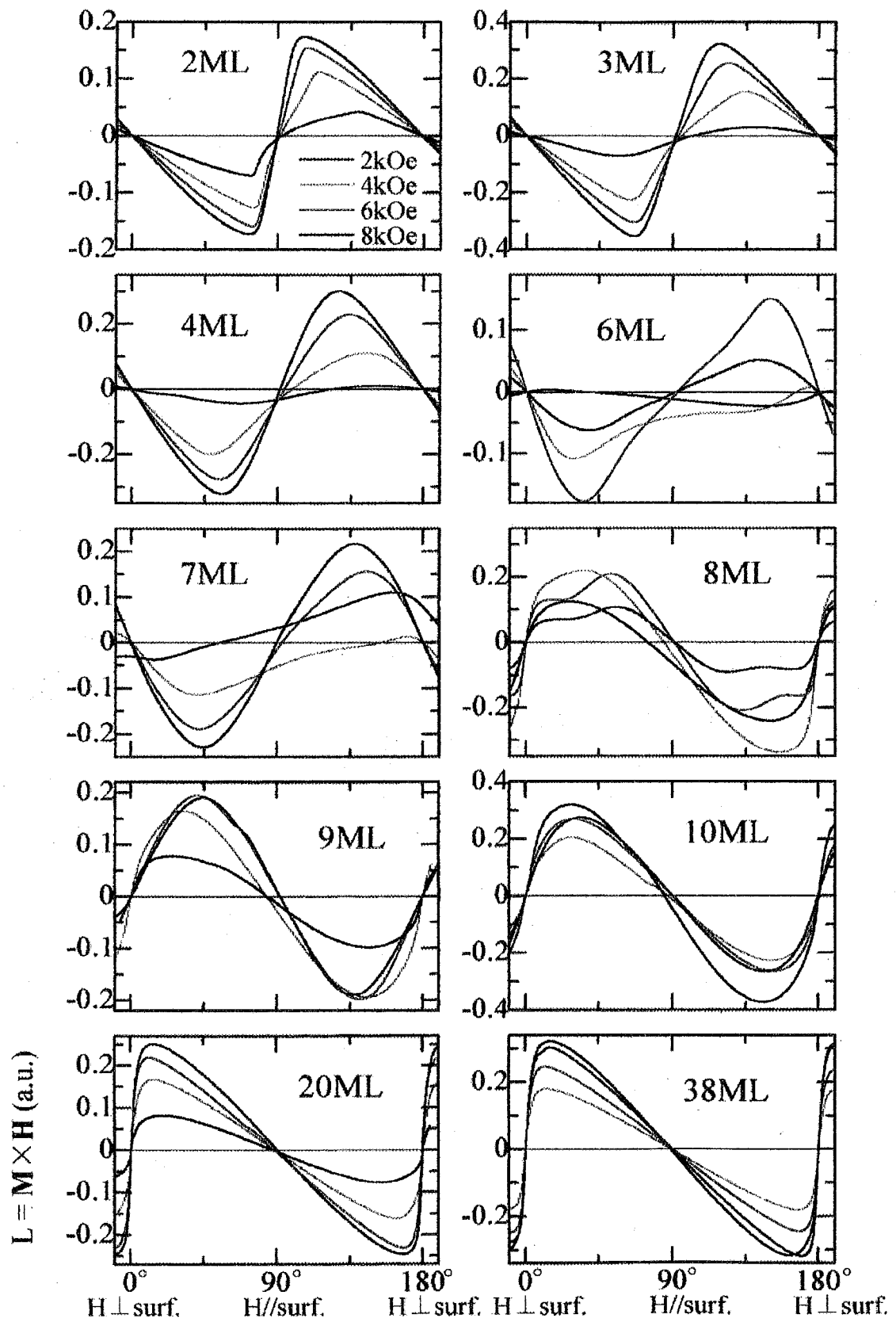


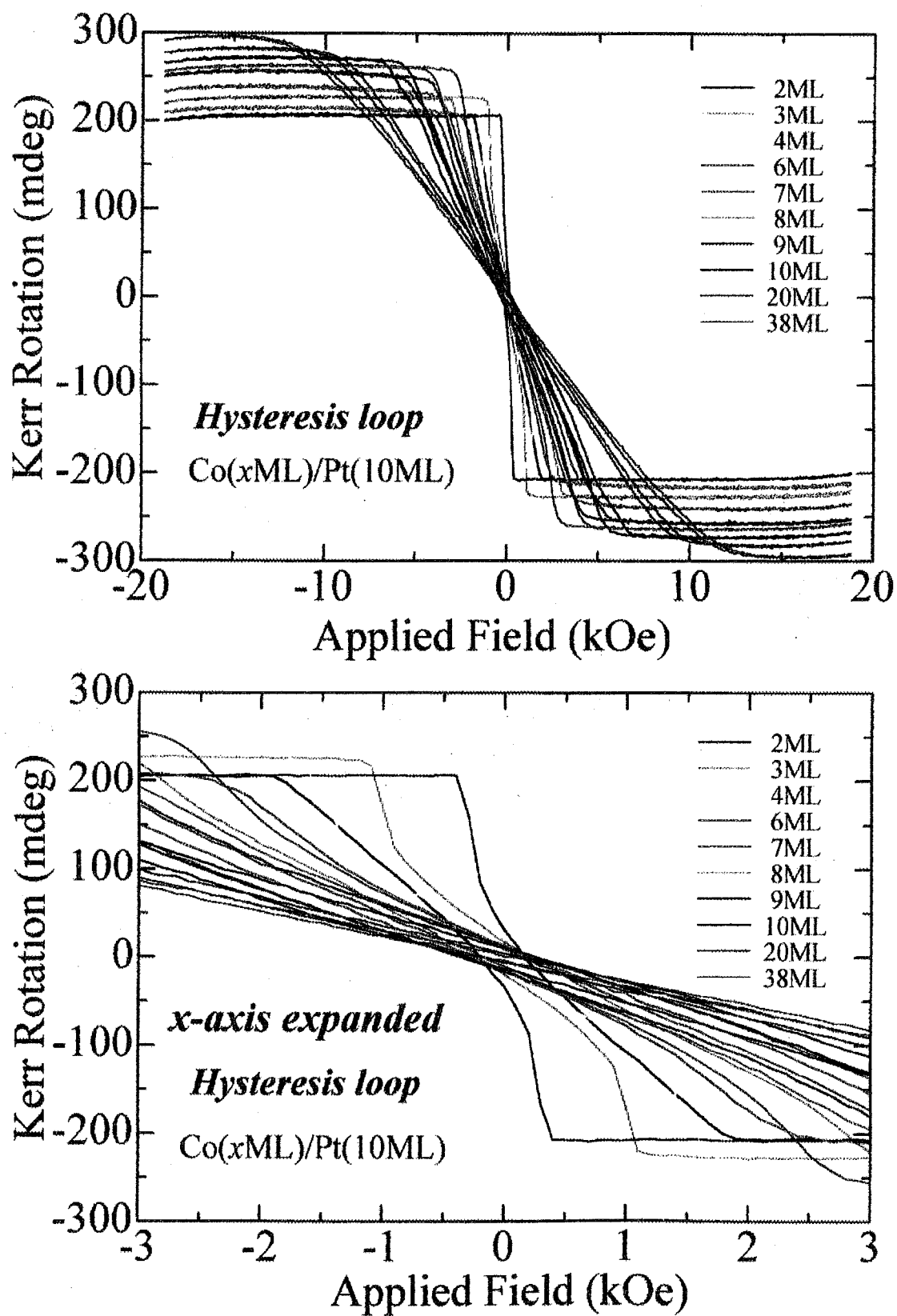
図 4.3: トルク曲線。(縦軸は任意でかつ試料ごとに異なる。)

割合が増加したことによる。光の染み込み深さに占めるCo層の割合を考えると、むしろCo層厚が薄い試料の方が一層あたりの磁化が増大しているといえる。

図4.4(b)に $x$ 軸拡大図を示した。反磁場補正を行っていないため、定量的にはわからないものの、明らかに38MLより2MLの試料の方が保磁力が増大していることがわかる。

図4.5にカー回転角およびカー楕円率のスペクトルを示す。両者はKramers-Kronigの関係(付録B参照)で結ばれている。簡単にいえば、カー回転角でのピークはカー楕円率での分散の形となって現れ、またその逆も成り立つ。したがって、両者の振る舞いは本質的に同じである。ここでは、カー回転角のスペクトルを用いて考える。

先に図4.4で試料の磁化について考察したが、この場合、用いている光のエネルギーが光学遷移の吸収端から離れた領域である必要があった。一般に吸収端でのスペクトル形状は分散形になる。図4.5をみると、ほぼ全領域で緩やかな変化をしており、上述の心配はいらない。特に、ヒステリシス測定に用いた2.48eVでは、何の構造も見られない。スペクトルは緩やかな変化をしているが、4eV近傍のカー回転角のピークがCo層厚の減少とともに大きくなり、エネルギーも高エネルギー側にシフトしている。

図 4.4: カー回転角の磁場依存性 (a) と *x* 軸拡大図 (b)。

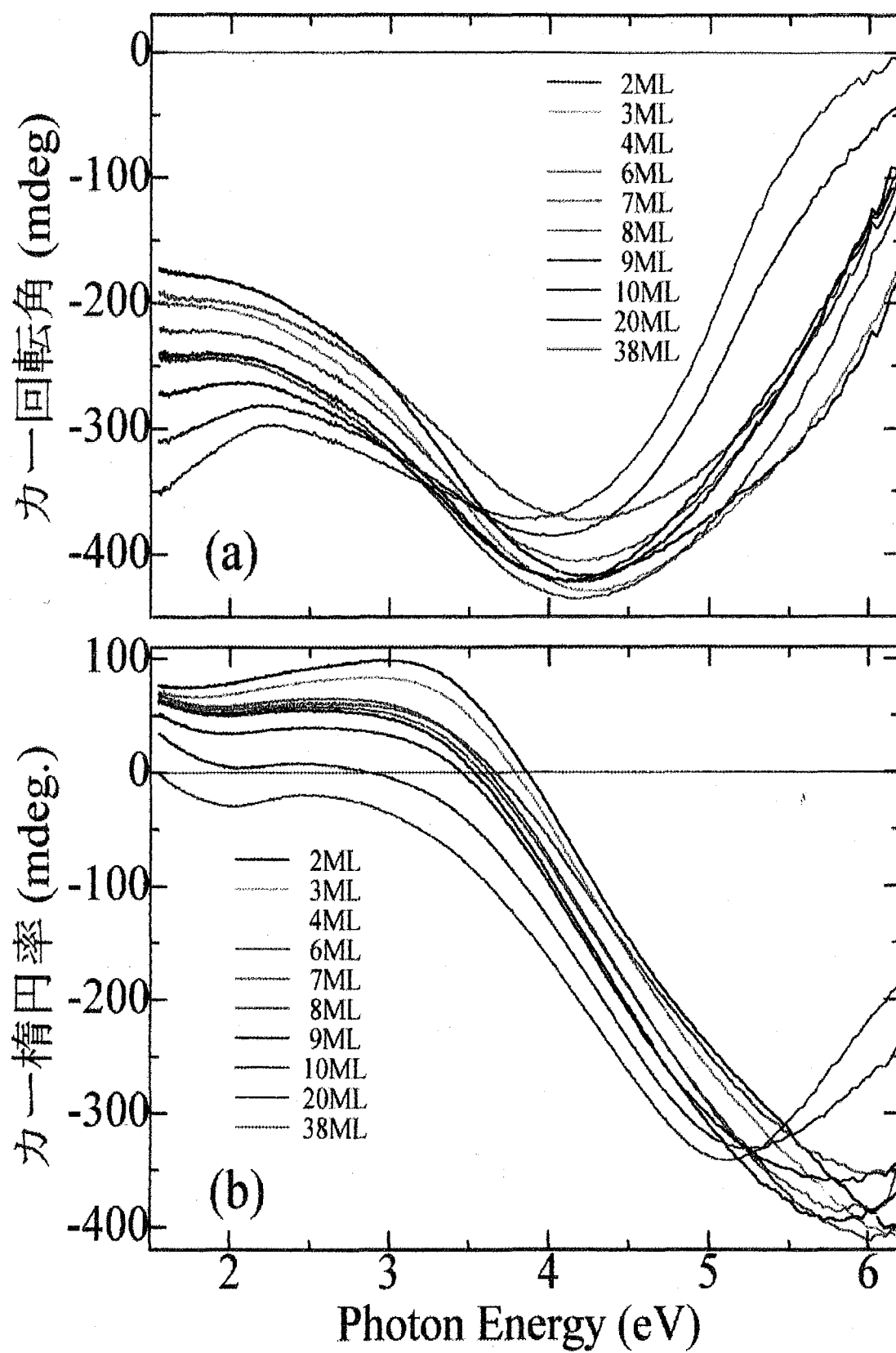


図 4.5: カー回転角 (a) およびカー楕円率 (b) のスペクトル。

## 4.2 放射光を用いた内殻吸収磁気円二色性

### 4.2.1 VUV 領域のMCD および反射率

KEK-PF BL28A で行った実験結果を図4.6～図4.9に示す。Co  $M_{2,3}$  吸収端近傍の反射率スペクトルを図4.6に、左右円偏光に対する反射率の差( $\Delta R = R_+ - R_-$ )を両者の平均( $R = (R_+ + R_-)/2$ )で規格化したスペクトル( $\Delta R/R$ )を図4.7に示す。図4.6では、各試料のスペクトルが見やすくなるように38MLの試料を基準にCo層の厚い試料から順に縦軸を+0.01ずつシフトして表示してある。同様に図4.7も+0.06ずつシフトしている。図3.9に示したBL28A出射光の円偏光度( $P_c$ )のエネルギー依存性を考慮して、アンジュレータ放射の第一ハーモニク( $h\nu_1$ )の位置を62.8eVにセットした。図3.9から、 $h\nu_1$ を基準に+5eV～10eVのエネルギー領域での $P_c$ は90%以上であることがわかる。この結果を考慮して、図4.7の $h\nu_1$ の位置をみると、MCDシグナルが現れている領域で90%以上の $P_c$ が保たれていることがわかる。MCDピークの強度は強く、反射率 $R$ に対し $\Delta R$ は6～18%となっている。

図4.8と図4.9にそれぞれPt  $N_{6,7}$  近傍の反射率スペクトルと反射MCDスペクトルを示す。図4.6、4.7と同様に縦軸をシフトしてある。図4.8では+0.015、図4.9では+0.03だけシフトしてある。 $h\nu_1$ は78eVにセットした。反射MCDの大きさは3%～10%程度である。

磁気光学スペクトルは、本来誘電関数(今の場合はテンソル)に基づいて議論すべきである。これは、(2.1)式や(2.2)式からわかるように、誘電率はミクロな量(ここでは振動子強度)との対応がつけやすく、物質本来の性質を表しているからである。そこで、図4.6～図4.9をKramers-Kronig解析により誘電率スペクトルに変換し、吸収率および吸収の円二色性に対応するテンソル成分( $\epsilon_{xx}^i, \epsilon_{xy}^r$ )を用いてスペクトル構造の特徴を考えることにする。

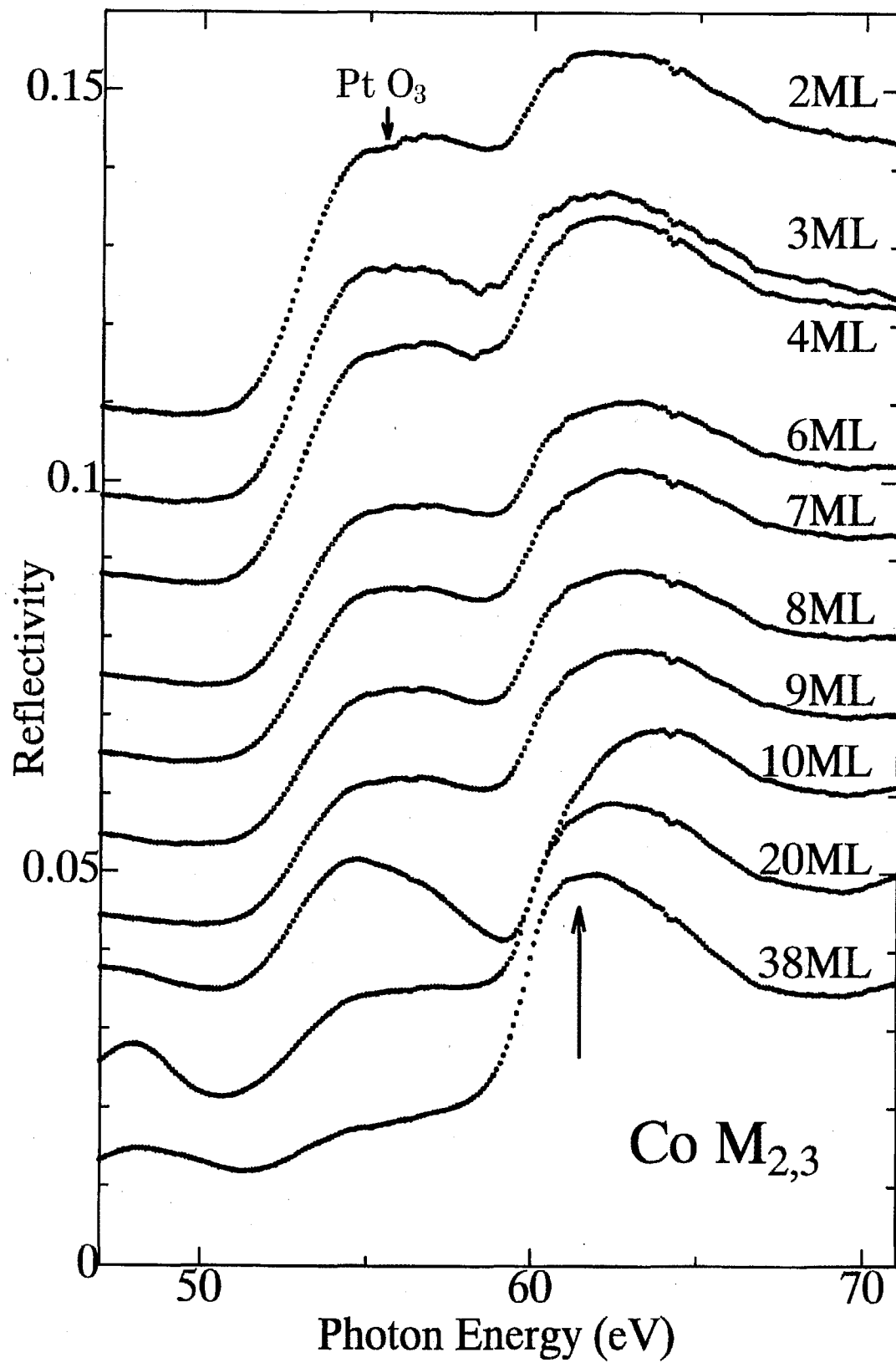


図 4.6:  $\text{Co M}_{2,3}$  および  $\text{Pt O}_3$  吸収端近傍の反射率スペクトル。(38ML を基準に 0.01 ずつ縦軸をシフトしている。)

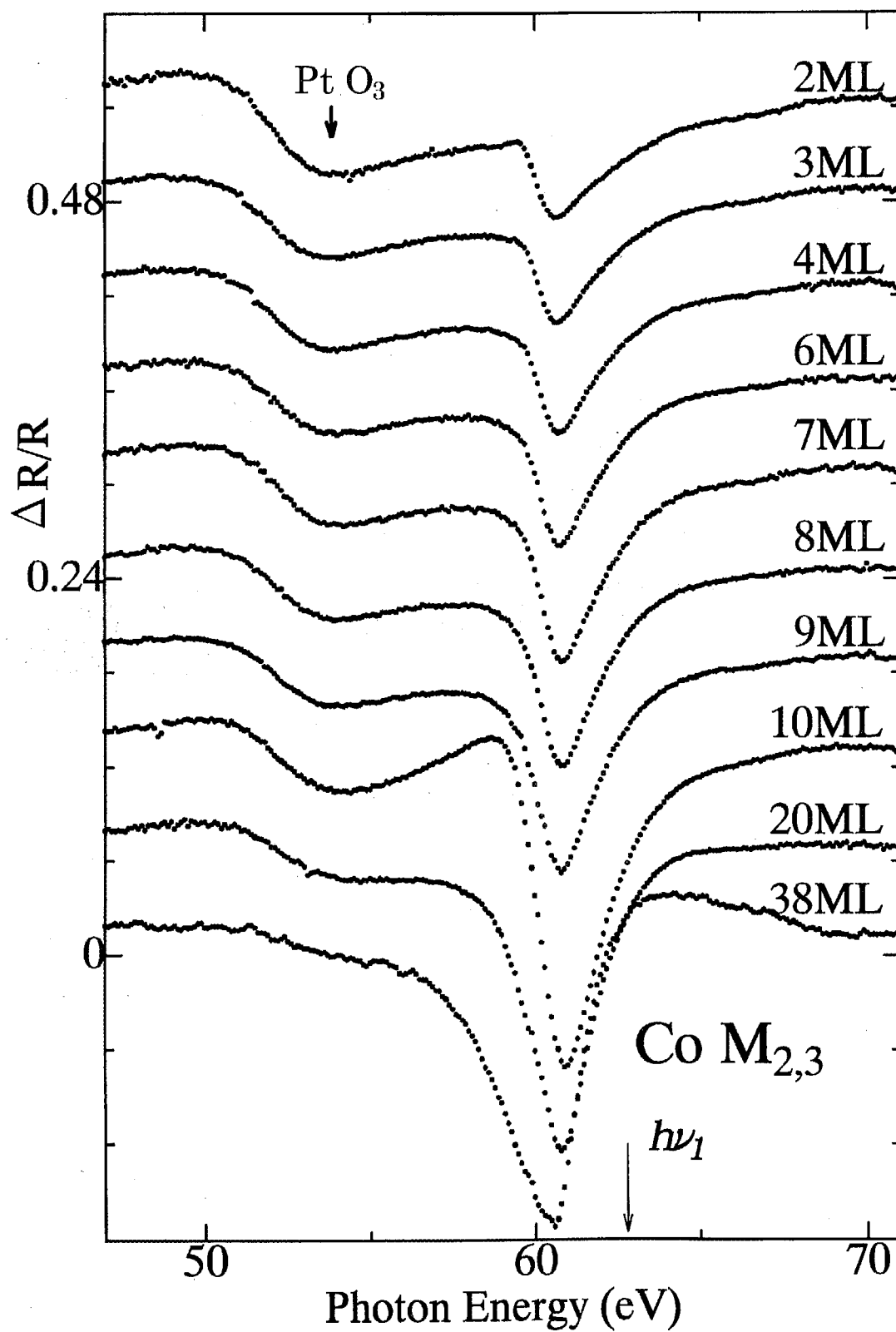


図 4.7: Co M<sub>2,3</sub>およびPt O<sub>3</sub>吸収端近傍の反射MCD スペクトル。(38MLを基準に0.06ずつ縦軸をシフトしている。)

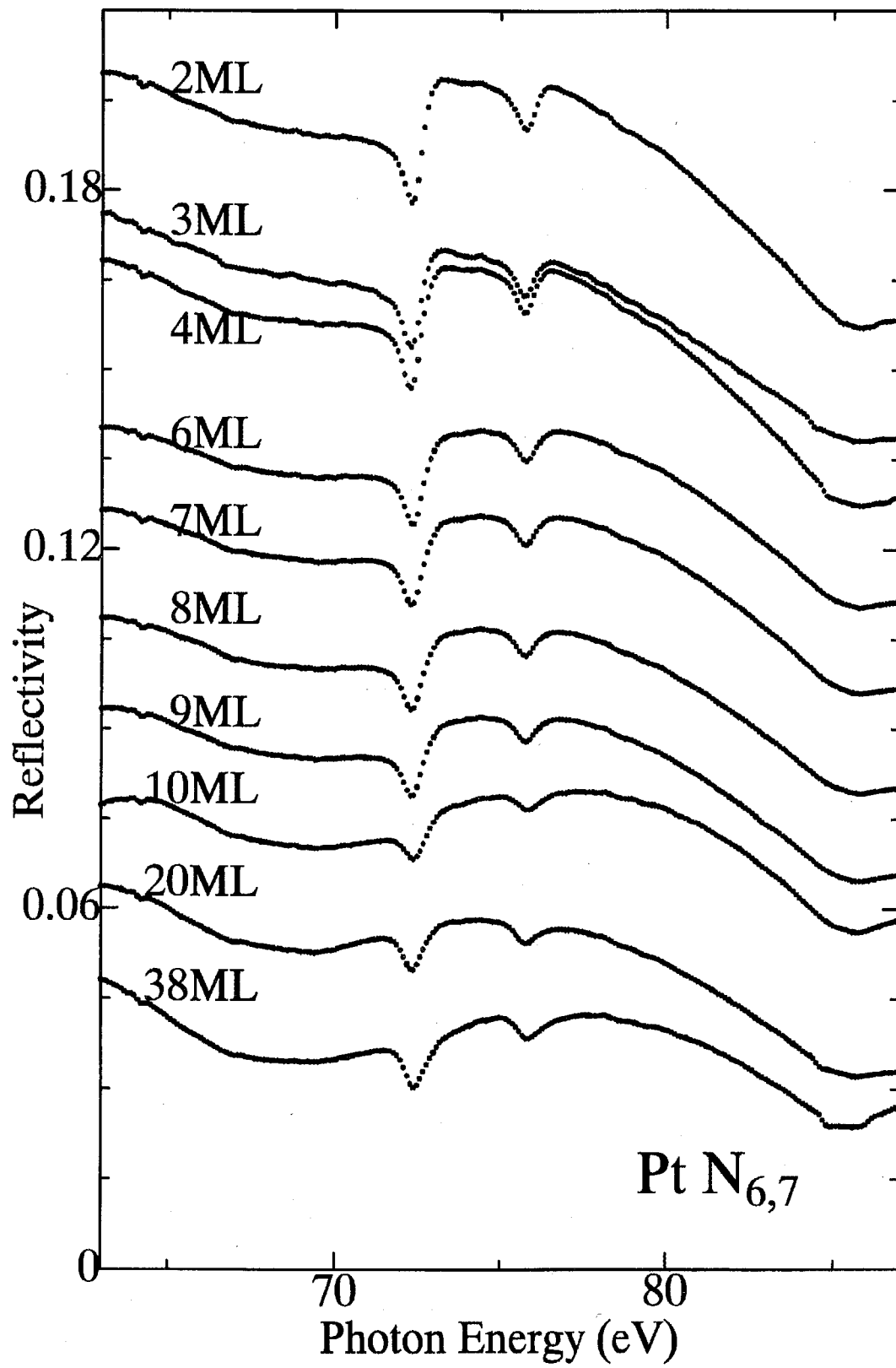


図 4.8: Pt N<sub>6,7</sub>およびPt O<sub>2</sub>吸収端近傍の反射率スペクトル。(38MLを基準に0.015ずつ縦軸をシフトしている。)

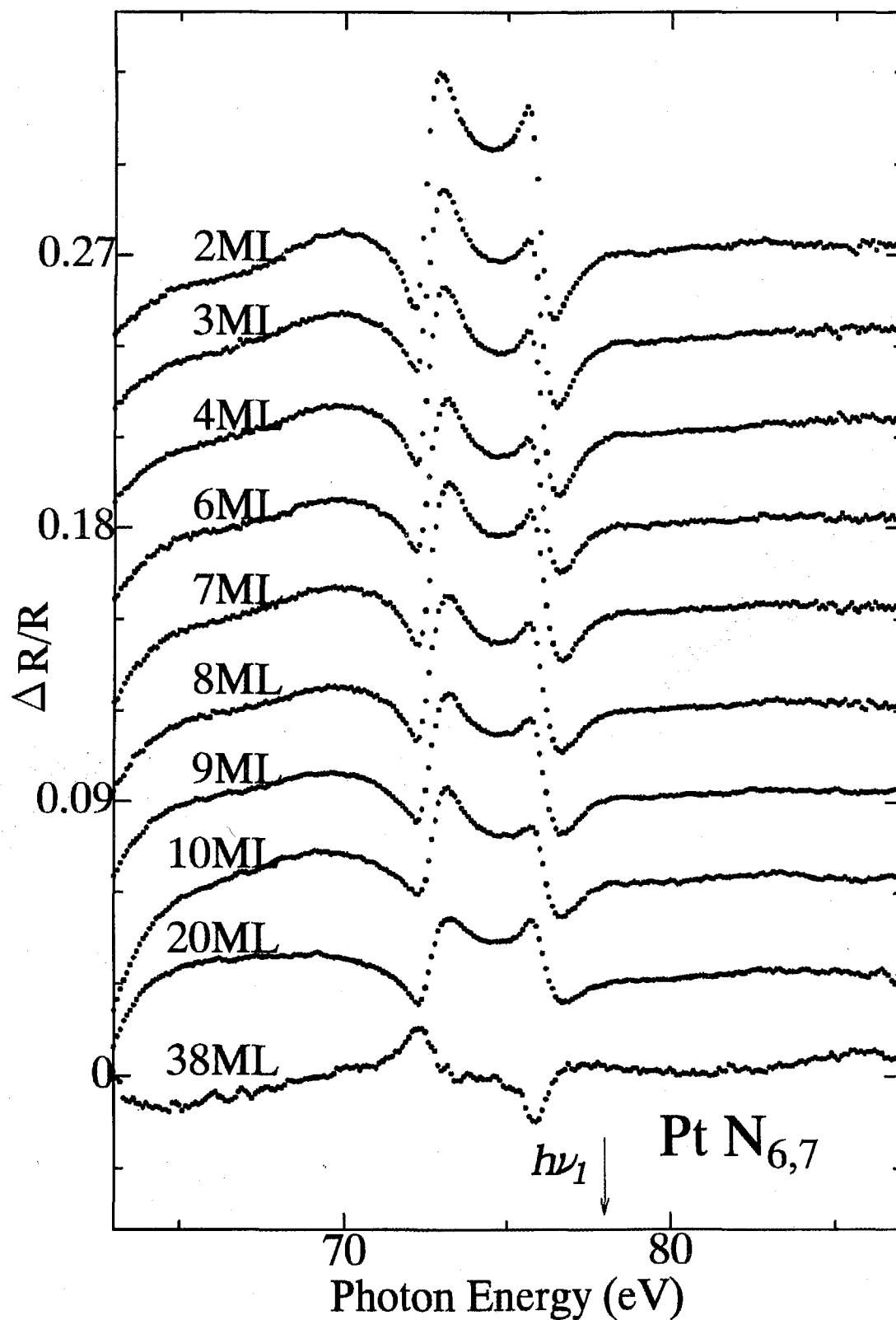


図 4.9: Pt N<sub>6,7</sub>およびPt O<sub>2</sub>吸収端近傍の反射MCDスペクトル。(38MLを基準に0.03ずつ縦軸をシフトしている。)

### 4.2.2 Kramers-Kronig 解析の結果

付録Bに示した諸関係式を用いることで誘電率テンソルを求めることができる。ただし、Kramers-Kronig 変換 ((B.3) 式) に際し、反射率に関しては特に低エネルギー側のスペクトルが必要になる。そこで、BL28A において零磁場の下で測定した 40~100eV の反射率スペクトルに、BL11C で測定した 4~45eV の反射率スペクトルをつなぎあわせて Kramers-Kronig 解析を行った。図 4.10 に 4~100eV の反射率スペクトルを縦軸方向に 0.1 ずつシフトさせながらを示す。(2.1) 式から、吸収過程に対応する誘電率テンソルの成分は対角項の虚部 ( $\varepsilon_{xx}^i$ ) であることがわかる。また、(2.2) 式から、MCD に対応するのは非対角項の実部 ( $\varepsilon_{xy}^r$ ) であることがわかる。以後特に断らない限り、 $\varepsilon_{xx}^i$  を吸収スペクトル、 $\varepsilon_{xy}^r$  を MCD スペクトルと同義に使う。なお、 $\varepsilon_{xx}^i$ 、 $\varepsilon_{xy}^r$  と吸収係数は、 $\varepsilon_{xx}^i = \frac{cn}{\omega} \mu$ 、 $\varepsilon_{xy}^r = \frac{cn}{2\omega} (\mu_+ - \mu_-)$ 、の関係がある。図 4.11~図 4.14 に Kramers-Kronig 解析により得られた誘電率を示す。

#### Co $M_{2,3}$ および Pt $O_3$ 吸収端の MCD

まず、Co  $M_{2,3}$  吸収端近傍のスペクトル構造を見てみる。図 4.11 の  $\varepsilon_{xx}^i$  を見ると、~54eV に Pt  $O_3(5p_{3/2} \rightarrow 5d)$  吸収端、~61eV に Co  $M_{2,3}$  吸収端が見られる。Co  $M_{2,3}$  吸収端は 3p 内殻正孔のスピ軌道相互作用が小さく遷移終状態で形成される  $3p^5 3d^{n+1}$  の配置間相互作用が強いため、 $M_2$  吸収端、 $M_3$  吸収端というふうに明確に二つの吸収端に分裂しない。2ML の試料から 38ML の試料へと人工周期の 1 周期中の Co の濃度が増えるにつれ、Pt  $O_3$  吸収端が弱まり、Co  $M_{2,3}$  吸収端が強まっていく様子がわかる。2ML, 38ML の試料の 1 周期中の Co 濃度はそれぞれ約 15%、約 77% である。図 4.12 の  $\varepsilon_{xy}^r$  を見ると、Pt  $O_3$  吸収端および Co  $M_{2,3}$  吸収端それぞれに MCD シグナルが現れている。Co  $M_{2,3}$  の MCD 構造は、Co 層厚の薄い試料では ~61eV に負のピークのみを持つのに対し、厚い試料 ( $\geq 20$ ML) では ~61eV の負のピークに続いて高エネルギー側 (~64eV) に正の MCD シグナルを持つことがわかる。また、負のシグナル自体も、38ML では ~55eV からなだらかな構造を持ち始めるのに対し、Co 層の薄い試料では ~60eV から始まる。その結果ピーク幅も Co 層の厚い試料の方が広く、薄い試料では狭くなっている。

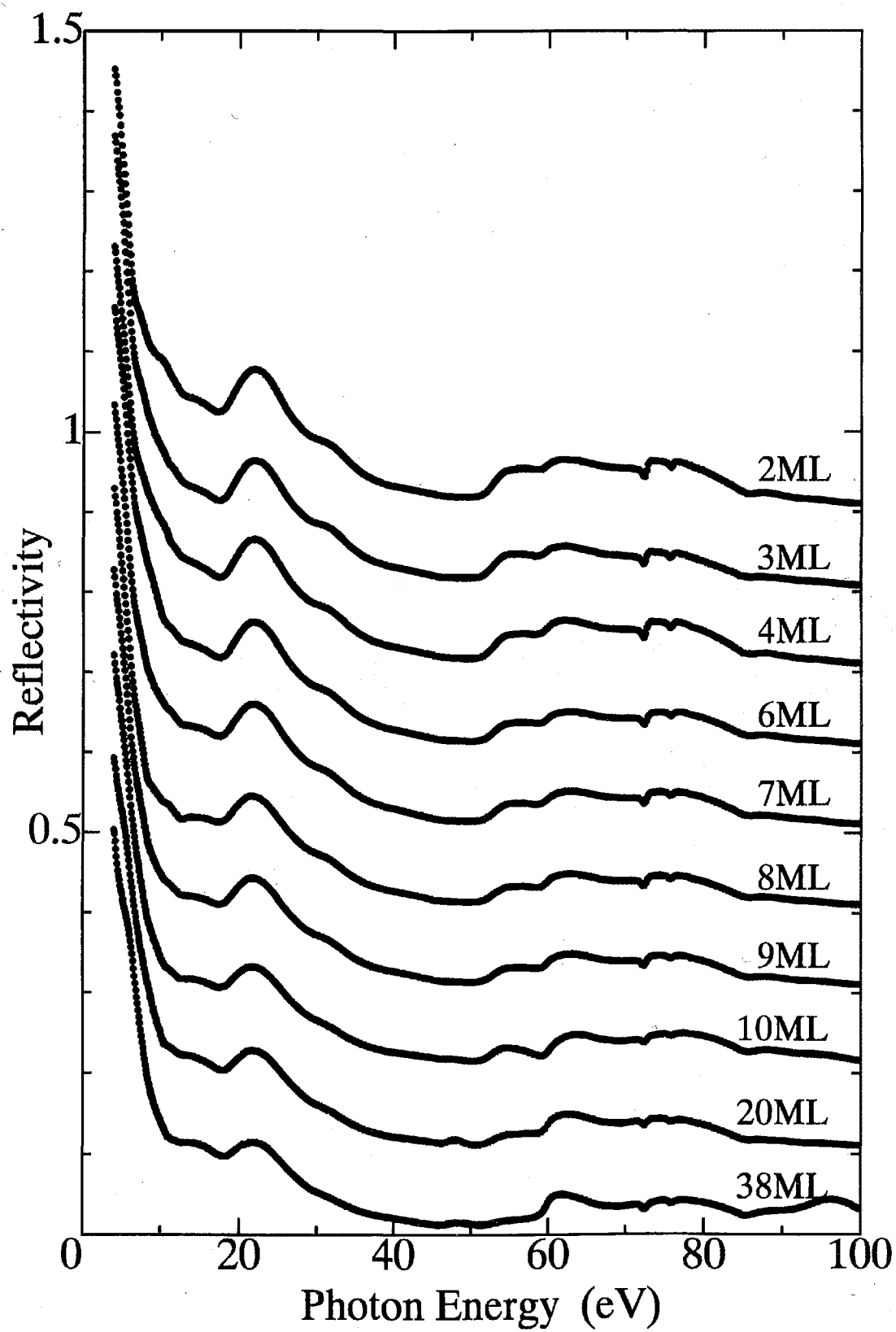


図 4.10: Co/Pt 多層膜の 4~100eV の反射率スペクトル。(38ML を基準に 0.1 ずつ縦軸をシフトしている。)

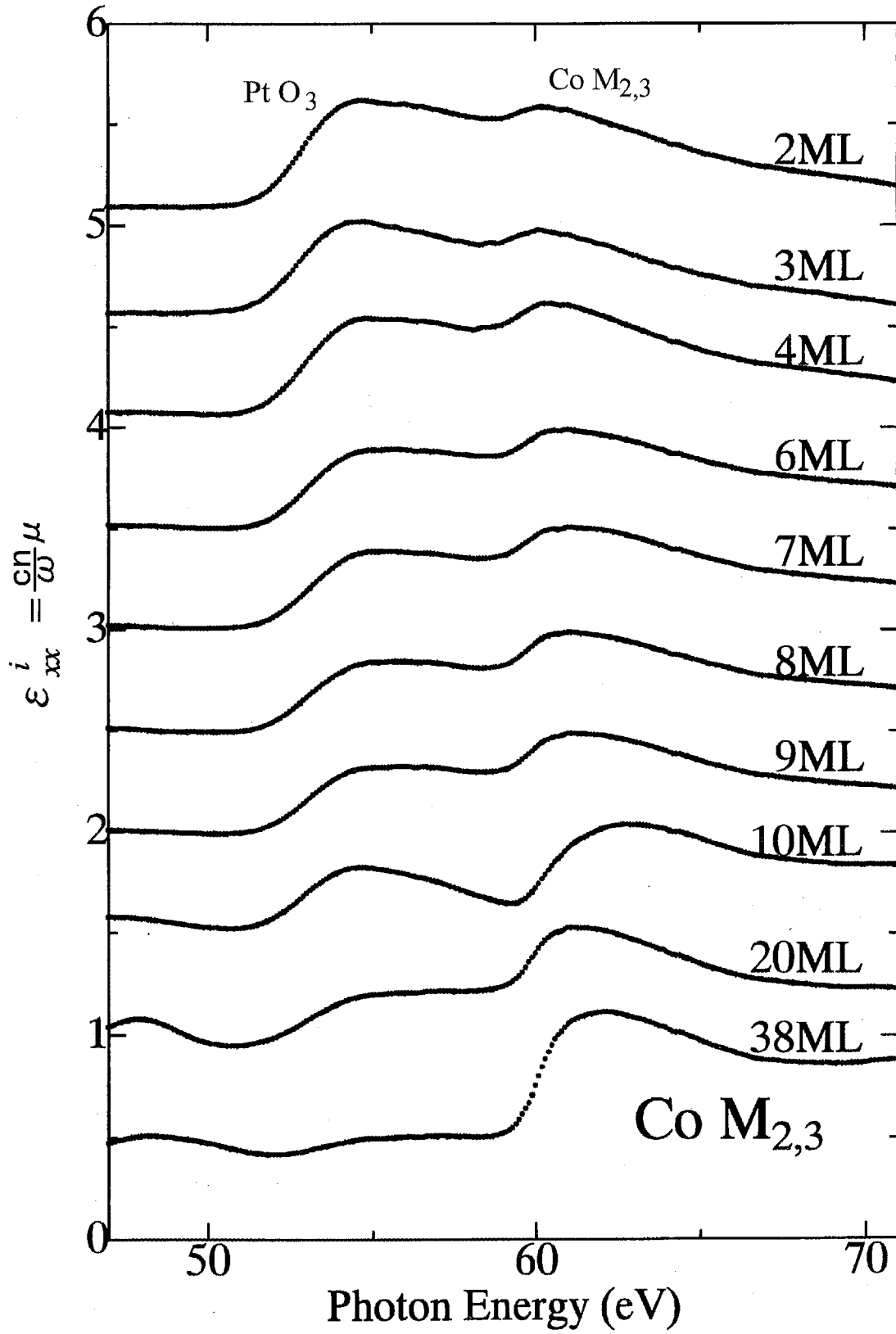


図 4.11: Co M<sub>2,3</sub>およびPt O<sub>3</sub>吸収端近傍の $\epsilon_{xx}^i = \frac{cn}{\omega} \mu$  スペクトル。吸収スペクトルに対応する。(38MLを基準に0.5ずつ縦軸をシフトしている。)

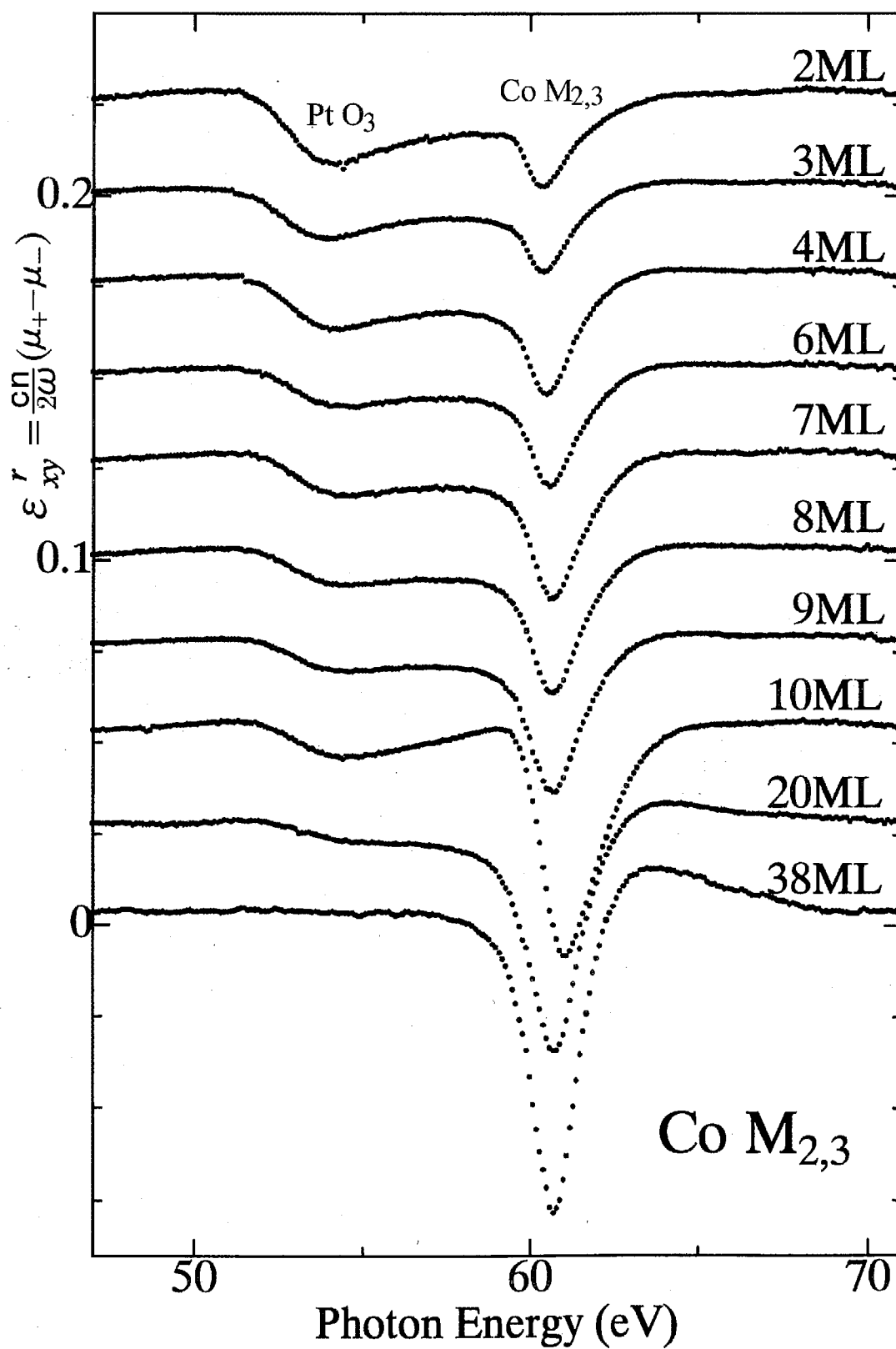


図 4.12: Co M<sub>2,3</sub>およびPt O<sub>3</sub>吸収端近傍の $\epsilon_{xy}^r = \frac{cn}{2\omega}(\mu_+ - \mu_-)$  スペクトル。吸収のMCDスペクトルに対応する。(38MLを基準に0.025 ずつ縦軸をシフトしている。)

MCD強度については  $\varepsilon_{xx}^i$  と同様に、Co濃度の変化に伴ってそれぞれの吸収端のMCD強度が変化している。特に、Co層の薄い試料では、Pt  $O_3$ の負のMCD構造が大きく、高エネルギー側はCo  $M_{2,3}$ のMCDシグナルと重なっている。Co層厚が増えるにしたがってPt  $O_3$ の負のMCDシグナルは徐々に小さくなり、38MLではほとんど確認できない。

以下に Co  $M_{2,3}$ およびPt  $O_3$ 吸収端近傍の  $\varepsilon_{xy}^r$  スペクトルに見られた主な特徴を箇条書きにしてまとめておく。

1. Co  $M_{2,3}$ 吸収端のMCDは、 $\sim 61\text{eV}$ に負のピークを持つ。Coの層厚が増大すると、 $\sim 64\text{eV}$ に正のシグナルを持つ。
2. Coの層厚が増大すると、 $\sim 61\text{eV}$ のピーク幅が増大する。
3.  $\sim 54\text{eV}$ にPt  $O_3$ 吸収端の負のMCDシグナルが現れる。
4. 各元素の構成比にしたがってMCD強度が系統的に変化する。

#### Pt $N_{6,7}$ およびPt $O_2$ 吸収端のMCD

次にPt  $N_{6,7}$ 吸収端近傍の誘電率スペクトルを見てみる。図4.13に示した  $\varepsilon_{xx}^i$  スペクトルを見ると、Co  $M_{2,3}$ 吸収の高エネルギー側の裾にPt  $N_7$  ( $\sim 72.5\text{eV}$ ) およびPt  $N_6$  ( $\sim 75.5\text{eV}$ ) の吸収構造が順にのっている格好になっている。これは、図4.10でも確認できる。図4.11で見られたPt  $O_3$ 吸収端に対応し、 $\sim 68\text{eV}$ にPt  $O_2$  ( $5p_{1/2} \rightarrow 5d$ ) の吸収構造が期待される [66] が、あまり明確に現れていない。図4.14に  $\varepsilon_{xy}^r$  スペクトルを示した。 $\varepsilon_{xx}^i$  で見られたPt  $N_{6,7}$  ピークのエネルギーと同じ位置に明確なMCDピークが、 $N_7$ 吸収端では正に、 $N_6$ 吸収端では負に現れる。 $\Delta R/R$ (図4.9) で現れていた複雑な構造は  $\varepsilon_{xy}^r$  では、 $\Delta I_{N_7} : \Delta I_{N_6} \simeq 1 : -1$  の単純な構造になっている ( $\Delta I$  はMCD強度)。Pt  $O_3$ 吸収端の場合と同様に、Co層厚の増加(あるいはPt層厚の減少)とともに、MCD強度は小さくなっているがスペクトル構造は全試料を通してほとんど変化していない。38MLの試料はS/Nが悪いが、この領域での光の染み込み深さが大きく見積もっても100Å程度(付録C参照)であることを考えると、これは最上層のPt層の情報しか測定していないことによるためであると考えられる(38MLの

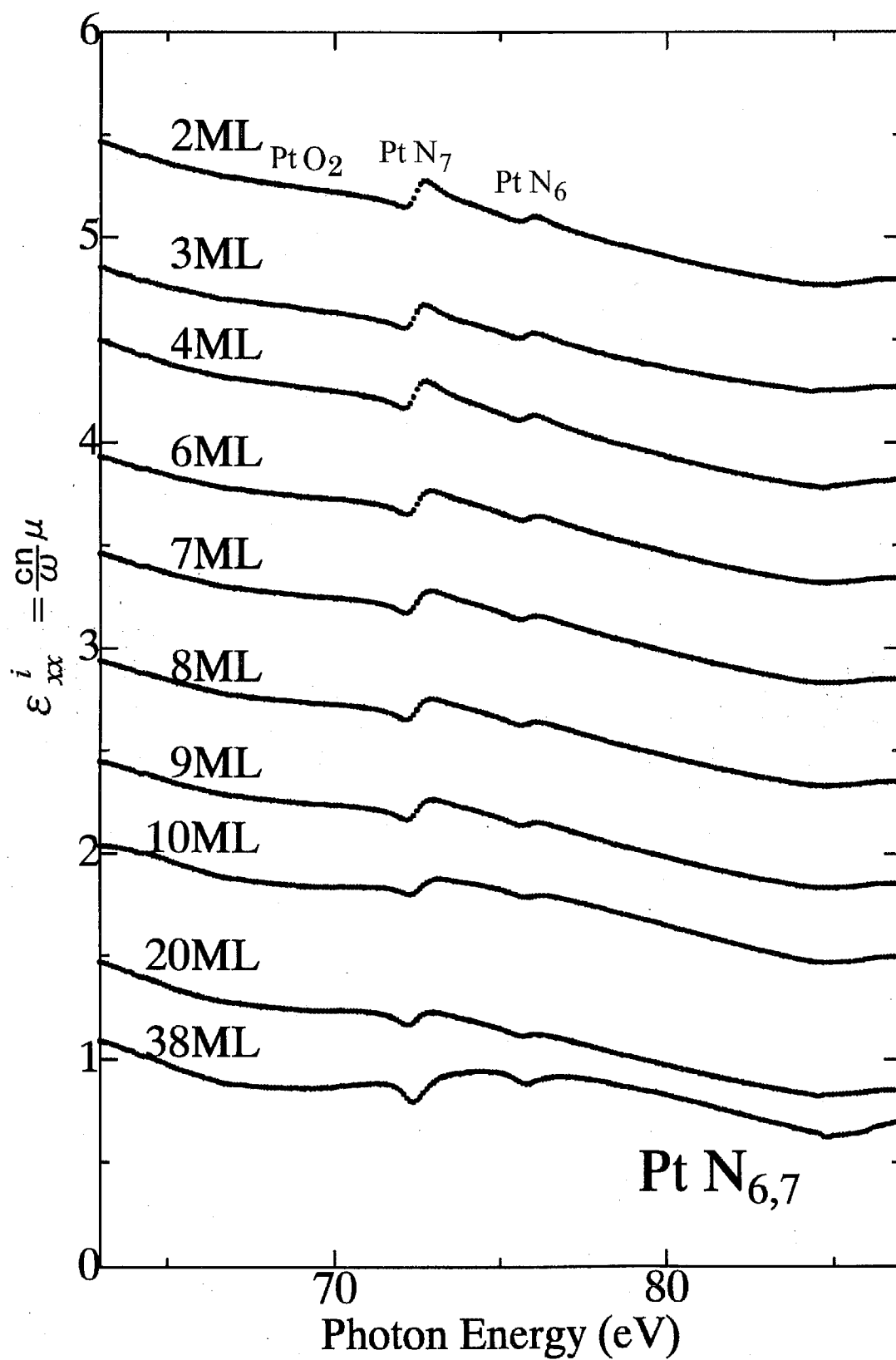


図 4.13: Pt N<sub>6,7</sub>およびPt O<sub>2</sub>吸収端近傍の $\epsilon_{xx}^i = \frac{cn}{\omega}\mu$  スペクトル。吸収スペクトルに対応する。(38MLを基準に0.5ずつ縦軸をシフトしている。)

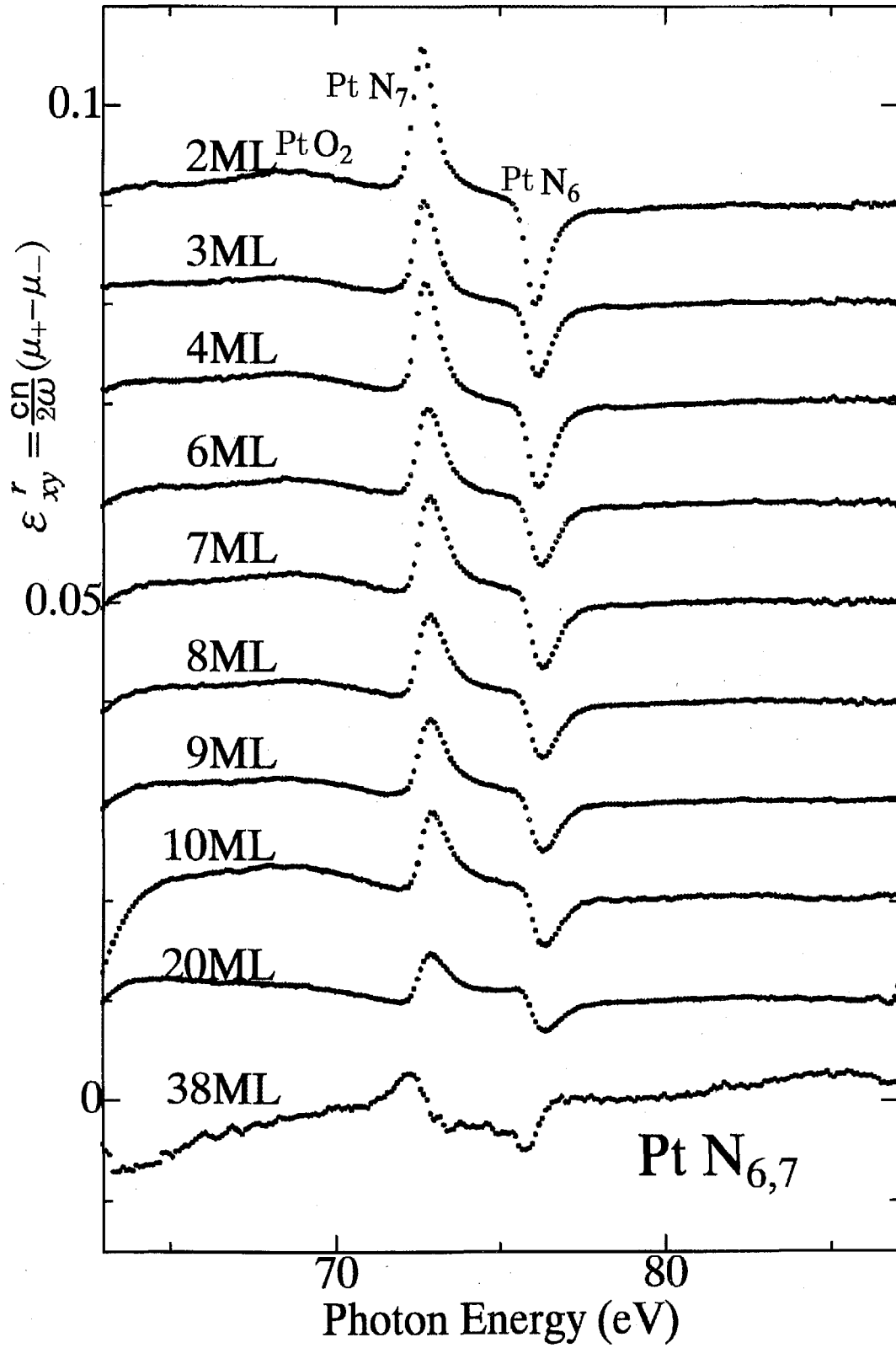


図 4.14: Pt N<sub>6,7</sub> および Pt O<sub>2</sub> 吸収端近傍の  $\varepsilon_{xy}^r = \frac{cn}{2\omega}(\mu_+ - \mu_-)$  スペクトル。吸収の MCD スペクトルに対応する。(38ML を基準に 0.01 ずつ縦軸をシフトしている。)

試料の人工周期は76Å)。また、特に2MLの試料では68eV付近に期待されていたPt O<sub>2</sub>吸収によると思われる小さな正のシグナルが見られる。

以下に Pt N<sub>6,7</sub>吸収端近傍の  $\varepsilon_{xy}^r$  スペクトルの特徴をまとめておく。

1.  $\Delta I_{N_7} : \Delta I_{N_6} \simeq 1 : -1$  の単純な構造をとる。
2. Pt 濃度による強度変化のほかは、全試料を通してスペクトル構造がほぼ同じである。

### 4.2.3 SX 領域のMCDおよび吸収スペクトル(XAS)

KEK-PF AR-NE1Bで行った実験結果を図4.15および図4.16に示す。アンジュレーターの第一ハーモニック位置( $h\nu_1$ )を790eVにセットした。図4.15はCo L<sub>2,3</sub>吸収端の光電子全収量(Total Electron Yield = TEY)スペクトルである。これは吸収スペクトル(X-ray Absorption Spectra = XAS)に対応すると考えてほぼ差し支えない(付録C参照)。10個の試料ともほとんど同様のスペクトル形状をしており、771.4eVにL<sub>3</sub>吸収による白色線、786.4eVにL<sub>2</sub>吸収による白色線が現れている。二つの白色線の強度比は始状態の縮退度の比 2:1 を反映した結果となっている。MCDに対応する左右円偏光に対する光電子全収量スペクトルの差を図4.16に示した。XASで白色線の現れたエネルギー位置に強いMCDが現れている。やはり、10個の試料ともほとんど同様のスペクトル形状をしており、L<sub>3</sub>吸収端で負、L<sub>2</sub>吸収端で正のMCDピークとなっている。この符号の順序は、Co M<sub>2,3</sub>吸収端のそれと同じである。図4.12で、特に20MLおよび38MLのスペクトルを見るとわかりやすい。L<sub>2,3</sub>吸収とM<sub>2,3</sub>吸収は遷移の始状態(内殻)が異なるだけの同じ p→d 遷移であり、図2.1と図2.2で説明した形状になるからである。L<sub>3</sub>とL<sub>2</sub>のMCD強度比は、38MLで -2:1 程度であるのが、Co層厚の減少とともに非対称度が増大し、2MLでは -3:1 程度になっている。これについては、次節で磁気光学総和則による定量的な解析を行う。

AR-NE1Bの分光領域(250~1500eV)では、ほかにPt N<sub>2,3</sub>(4p<sub>1/2,3/2</sub> → 5d)吸収端でMCDが期待されるが、吸収構造も確認できず、したがってMCDも見られなかった。これは、軟X線に対するPt 4p殻の散乱断面積が、Co 2p殻のそれよりも一桁程度小さいことによる[67]。

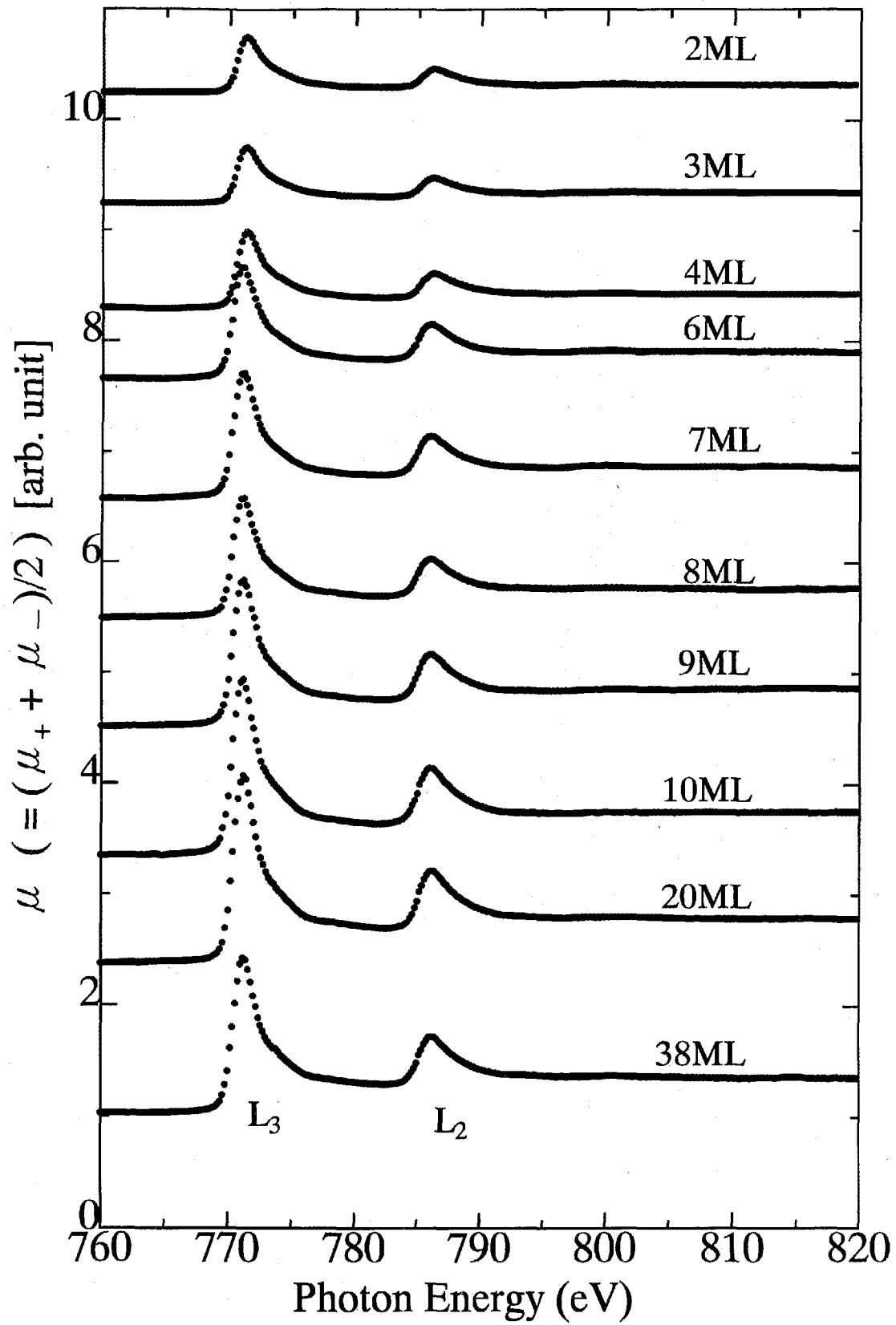


図 4.15: Co  $L_{2,3}$  吸収端近傍の光電子全収量スペクトル。吸収スペクトルに対応する。(38ML を基準に 1 ずつ縦軸をシフトしている。)

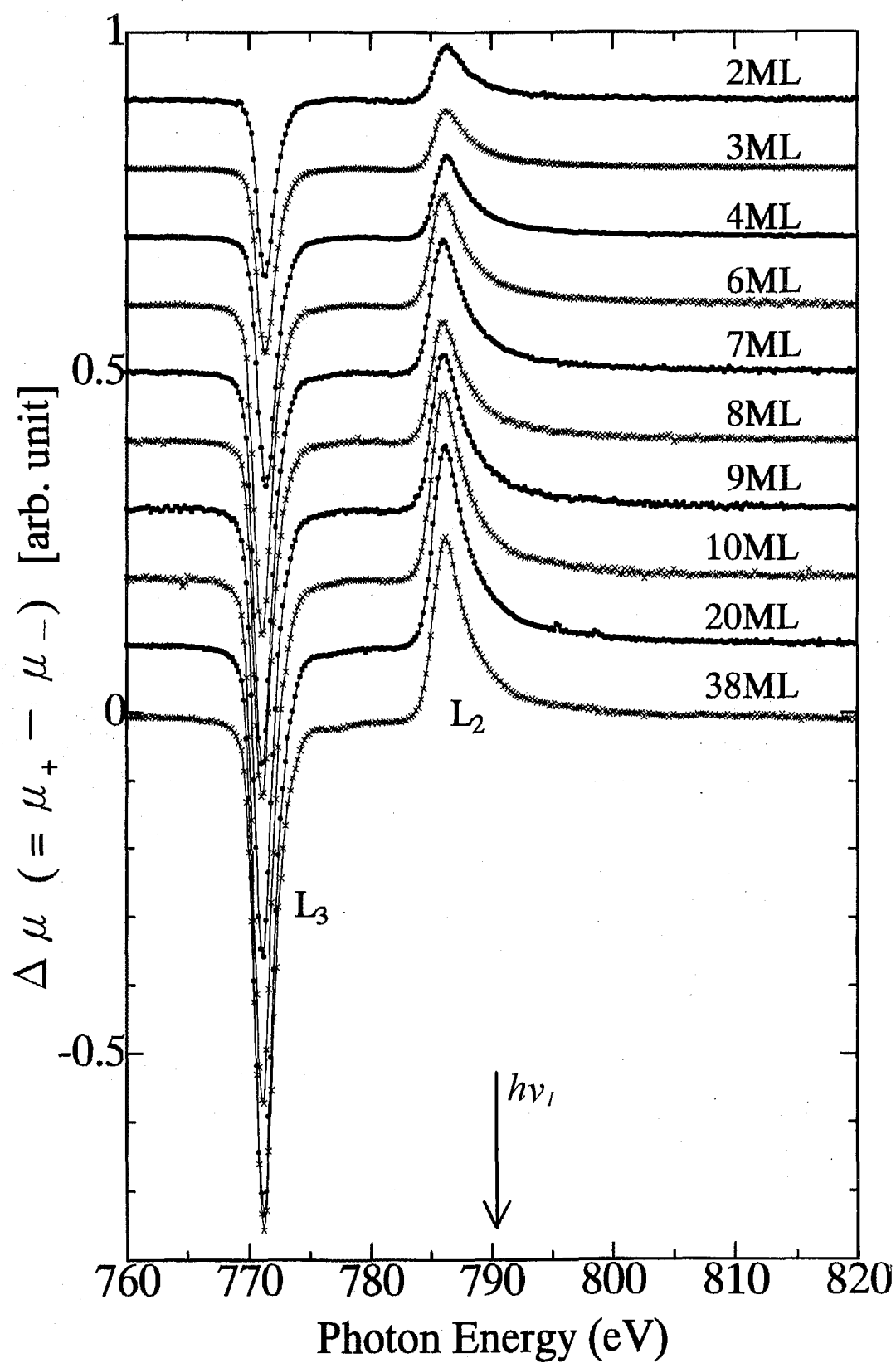


図 4.16: Co L<sub>2,3</sub>吸収端近傍のMCD スペクトル。(38MLを基準に0.1ずつ縦軸をシフトしている。)

#### 4.2.4 軌道角運動量とスピン角運動量の導出

Co  $M_{2,3}$ 吸収端(図4.12) および  $L_{2,3}$ 吸収端(図4.16) のMCD スペクトルに見られていた非対称度は、Co サイトの軌道角運動量と直接に関係していることは、2.1節で示した通りである。また、MCD スペクトルのグラフ上での面積はスピン角運動量と関係していることは、2.2節で説明した。これらを定量的に評価するのが磁気光学総和則であった。

ところで、Co  $M_{2,3}$ 吸収端のMCDはPt  $O_3$ 吸収端のMCDと重なるため、Co  $M_{2,3}$ 吸収端だけを独立に取り出すことが困難であり、また明確に零レベルを決定することもできない。さらに、 $\langle S_z \rangle$  総和則((2.11) 式) の適応にあたっては  $M_2$  と  $M_3$  吸収端の分離ができないため、事実上この吸収端での磁気光学総和則の適用ができない。 $L_{2,3}$ 吸収端ではこれらの問題点はなく、磁気光学総和則による軌道角運動量およびスピン角運動量の算出が可能である。

一例として、図4.17に9MLのXASおよびMCDスペクトルを積分した結果を示す。積分実行に際し、XASスペクトルの  $L_3$ 、 $L_2$ 各吸収端より高エネルギー側での吸収強度の跳び(バックグラウンド)を差し引く必要がある。バックグラウンドとして、次式で表される各吸収端にしきい値を持つ二段ステップ関数を差し引いた(図4.17(b) 破線)[68]。

$$B.G.(E) = a\left(\frac{2}{3} \tan^{-1}(E - E_{L_3}) + \frac{1}{3} \tan^{-1}(E - E_{L_2})\right) + b, \quad (4.1)$$

ここに、 $a, b$ はスペクトルから決定される定数である(図4.17(b) 参照)。 $L_3$ および  $L_2$ 吸収端でのステップの高さは、それぞれの縮重度の比(2:1)で決定される。XASから  $B.G.$ を差し引いたスペクトル積分したものがXAS積分スペクトルとして得られた結果である(図4.17(b) 実線)。

総和則(2.10) 式と(2.11) 式において分母に現れる吸収係数  $\mu_0$  を、左右円偏光に対する平均の吸収係数に等しいとして扱う。また  $\langle S_z \rangle$  総和則において、 $\langle T_z \rangle$  を微小項と考えて無視する。この場合、(2.10) 式と(2.11) 式は次のようになる。(  $\langle S_z \rangle$  総和則においては分子の積分範囲の取り扱いを変えてある。 )

$$\langle L_z \rangle = -\frac{2}{3} \frac{\int_{L_3+L_2} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{L_3+L_2} (\mu_+ + \mu_-) / 2 d\omega} (10 - n), \quad (4.2)$$

$$\langle S_z \rangle = -\frac{3 \int_{L_3} (\mu_+ - \mu_-) d\omega - 2 \int_{L_3+L_2} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{2 \int_{L_3+L_2} (\mu_+ + \mu_-) / 2 d\omega} (10 - n), \quad (4.3)$$

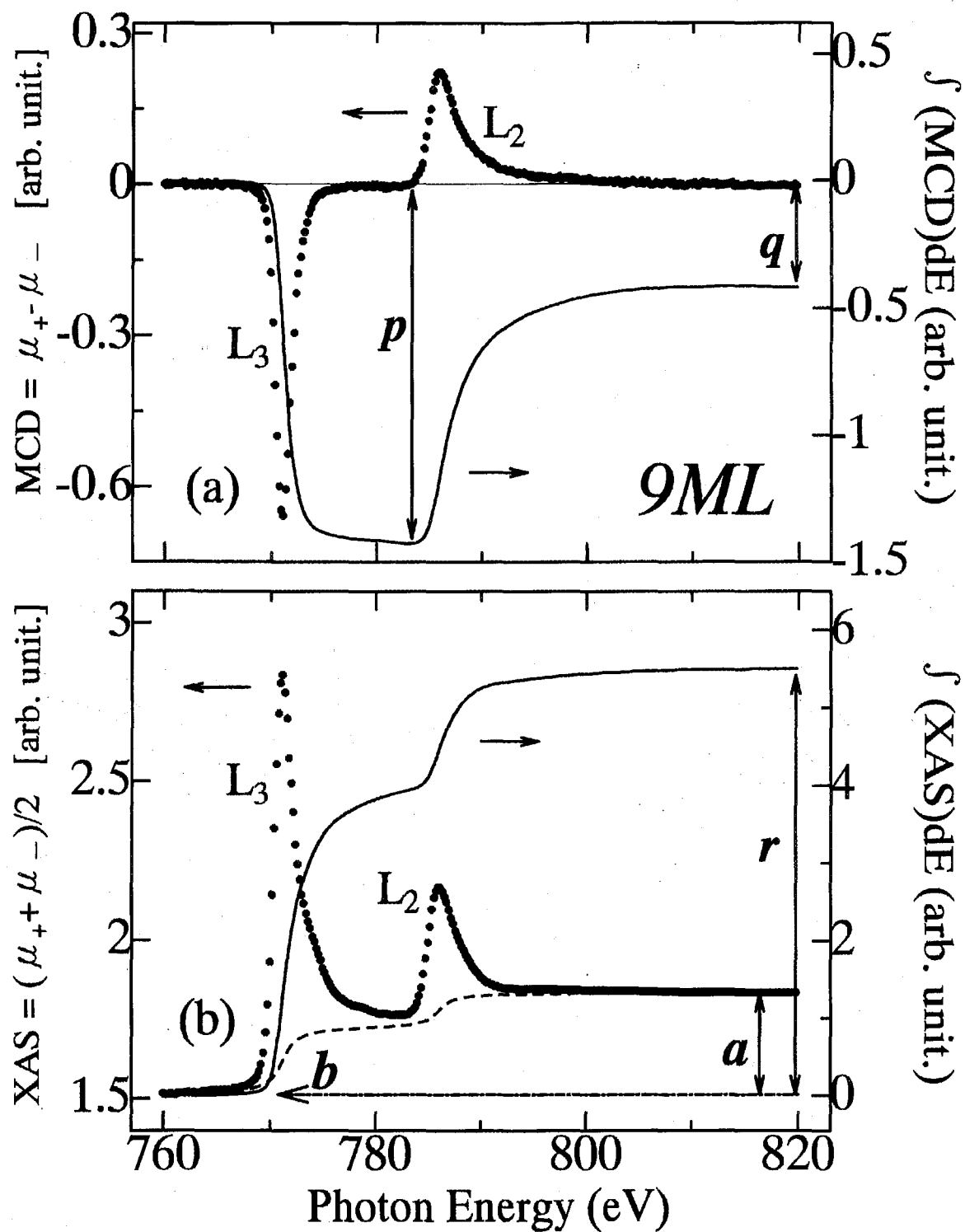


図 4.17: 9ML の MCD(a) および XAS(b) の積分スペクトル。XAS スペクトルの積分に際しては、破線で示される  $L_3$ 、 $L_2$  吸収端にしきい値を持ち、強度比 2:1 の高さの逆正接関数をバックグラウンドとして、これを差し引いて積分した。 $a$ 、 $b$ 、 $p$ 、 $q$ 、 $r$  については本文参照。

これを図4.17中に示した  $p, q, r$  を用いて表すと、

$$\langle L_z \rangle = -\frac{2q}{3r}(10-n), \quad (4.4)$$

$$\langle S_z \rangle = -\frac{3p-2q}{2r}(10-n), \quad (4.5)$$

となる。また、MCD スペクトルだけから得られる  $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$  に対する (2.12) 式は、

$$\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle = \frac{4}{3} \frac{q}{3p-2q}, \quad (4.6)$$

と表される。

各試料に対し、図4.17で示した積分を実行し、(4.4)~(4.6) 式を用いて、軌道角運動量、スピン角運動量および両者の比を計算した。まず、MCD スペクトルだけから得られる  $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$  の結果を図4.18に示す。横軸はX線回折により得られたCo層の厚さである。このグラフから、 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$  のCo層厚依存性を読み取ることができる。横軸の誤差はX線回折の回折パターンから得られた結果であり、縦軸の誤差は総和則を適用する場合に問題となるMCDの零レベルの取り方の若干の不確定さ<sup>3</sup>および図4.17(b)に破線で示したXASのバックグラウンドの見積もり方から決められたものである。 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$  はCo層厚が4ML以下で急激に増大していることがわかる。この値やグラフの傾向は、ホール数、円偏光度、図4.17(b)の  $a$ 、 $b$  などのパラメーターを仮定することなくMCDスペクトルだけから実験的に見出された結果であり、非常に信頼のおけるものである。

次に、(4.4) 式および (4.5) 式を用いて得られた軌道角運動量およびスピン角運動量の期待値のCo層厚依存性を図4.19に示す。スピン角運動量 ( $\langle S_z \rangle$ ) については、スピン磁気モーメントと  $\mu_s = -2\mu_B \langle S_z \rangle$  の関係で結びついていることを考慮して、 $2\langle S_z \rangle$  を示した。横軸および縦軸の誤差は図4.17と同じである。なお、図4.19は、 $P_c=95\%$  として円偏光度の補正をしてある。BL-NE1Bでの円偏光度の実測値は無いが、光学系の材質や配置を考慮した幾何光学的な計算から、 $P_c=95\pm3\%$  と見積られている(したがって、縦軸全体に $\pm3\%$ の誤差がある。)

<sup>3</sup>例えば、図3.14のB、B'で示した磁極の孔に光を通す場合に、完全に同量の光束が試料に当たるとは言いきれず、両者の差をとったときに零レベルが若干ずれることがある。また、採用した測定法の性質上、B、B'の位置での幾何学的な配置の差から光電子の感じる場にどうしても差が生じてしまうことも、この不確定さの要因である。

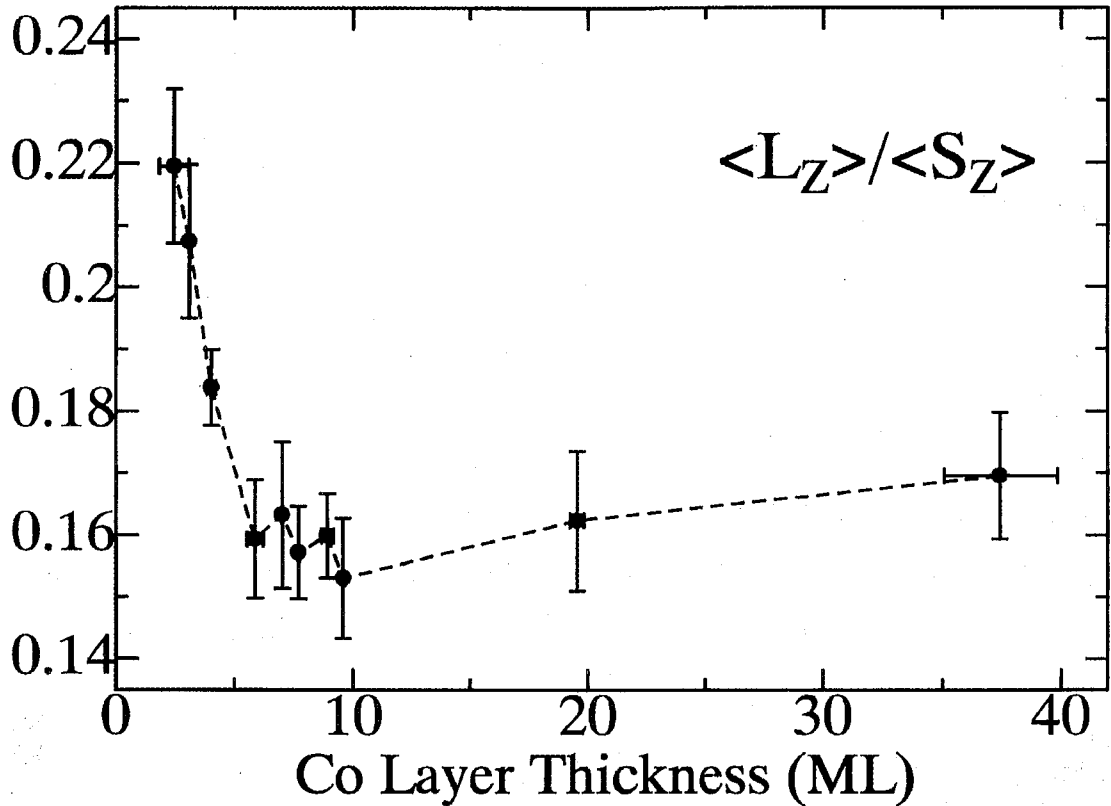


図 4.18: 磁気光学総和則より求めた Co サイトの軌道角運動量の期待値とスピン角運動量の期待値の比。破線はガイド線である。

(4.4) 式および (4.5) 式の適用にあたって基底状態での Co 3d 電子数  $n$  が必要である。これは、両式中に  $(10 - n)$  と現れていることから 3d 正孔数と言うこともできる。(∵ 3d 軌道は全部で 10 個である。) 以降の議論のために、 $h = 10 - n$  として正孔数を定義しておく。図 4.19 は、10 個の試料とも  $h = 2.49$  として計算した結果である。この値は Co 単結晶に対する最近の理論計算で報告されている値の平均値である [72, 73]。また、この理論計算によれば、Co 3d 正孔数は、単結晶、Co/Pt 多層膜、Cu 上の Co 薄膜を通じてほとんど変化がない。したがって、10 個の多層膜試料で上記の値を用いることは妥当であると考えられる。

$\langle L_z \rangle$  は、 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$  と同様に 4ML 以下で急激に増大していることがわかる。4ML 以下では、図 4.3 で示したように、垂直磁気異方性が明確に現れることから、この  $\langle L_z \rangle$  の増大が磁

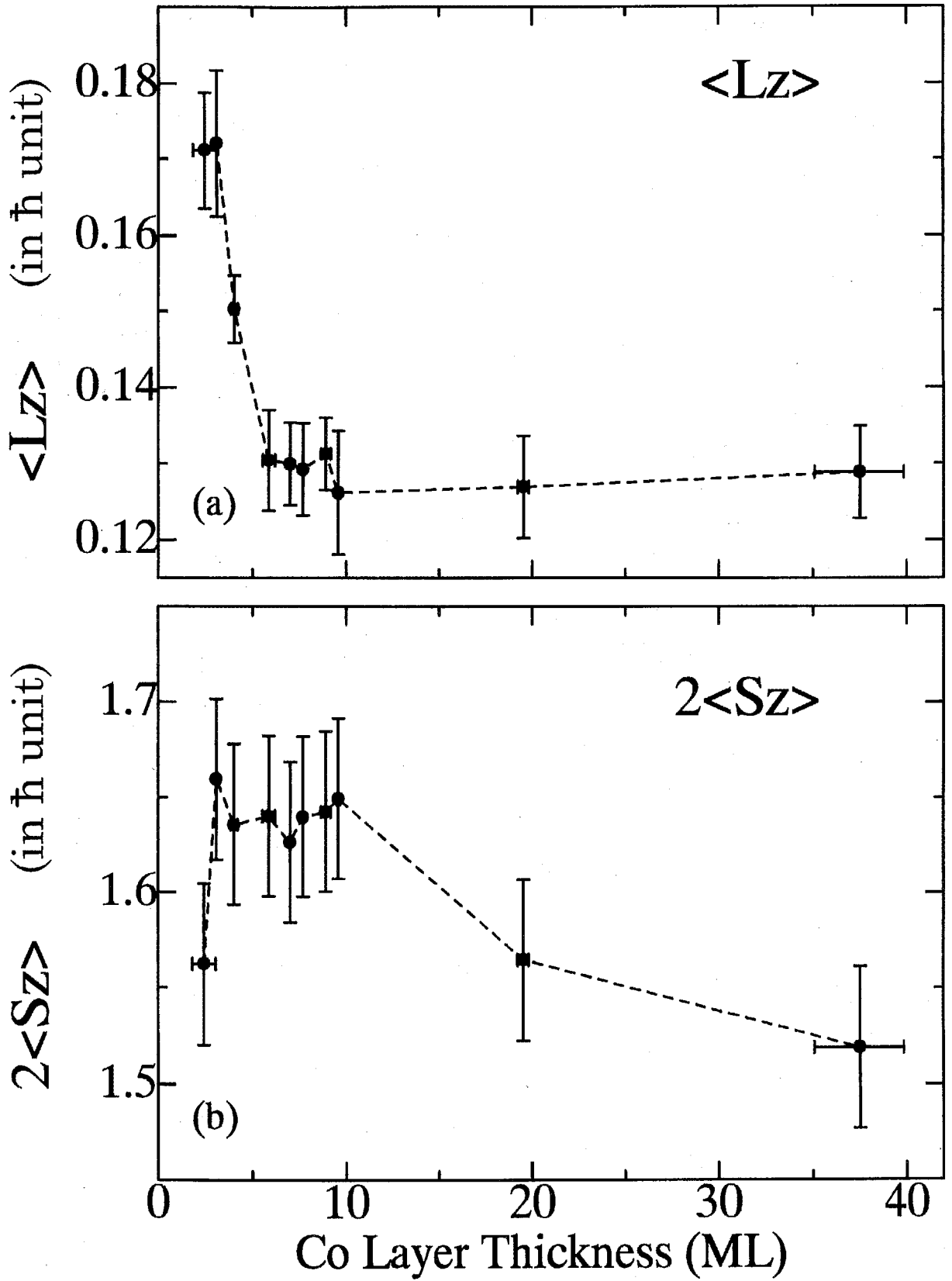


図 4.19: 磁気光学総和則より求めたCoサイトの軌道角運動量の期待値(a)とスピン角運動量の期待値(b)。 $\hbar$ 単位。 $n_{3d} = 7.51$ として計算した。破線はガイド線である。

気異方性の変化と密接に関係があると結論できる。また、6ML→4ML および4ML→3MLでの増大に対し、3ML→2MLは誤差範囲を考慮してもほとんど変化していない。これは、層厚の減少による $\langle L_z \rangle$ の増大と、室温では磁気秩序をとる臨界層厚があるためにその増大傾向が頭打ちになることによる結果などが予想される。この結果は、1.8ML以下のCo層厚では強磁性秩序が見られないという報告[69, 70, 71]ともほぼ一致する。

$\langle S_z \rangle$ については、ややばらつきがあるものの全体的にCo層厚の薄い試料の方が大きくなっている。系全体を通して正孔数の変化は小さいと考えられる[72, 73]ことから、このわずかな増大傾向は多数スピン状態と少数スピン状態の占有率の変化を反映していると予想される。また、2MLの結果が小さくなっているのは、先に述べた2ML以下での磁気秩序発達の頭打ち傾向によるものと解釈できる。

図4.19の二つのグラフから、MCD スペクトルだけから得られた $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ の急激な増大は主に $\langle L_z \rangle$ の急激な増大によるものとわかる。また、 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ は、30ML→10MLまで、わずかに減少しているとも見ることもできるが、これは $\langle S_z \rangle$ のわずかな増大傾向によるものである。

次章ではVUV領域での結果と合わせて、図4.18、図4.19をもとにCo/Pt多層膜の電子構造を議論する。

## 第5章

### 議論

本章では、Co/Pt 多層膜の電子状態を、4章で示したMCD 実験の結果をもとに議論する。まず、VUV 領域のMCD スペクトルから得られる物理情報を述べる。次にSX 領域の結果から総和則で磁気モーメントを算出する際の $2p \rightarrow 4s$  遷移の寄与について考察する。最後に磁気異方性出現のメカニズムを考察する。

#### 5.1 VUV 領域の結果から

Kramers-Kronig 解析により得られた  $\varepsilon_{xy}^r \simeq \frac{cn}{2\omega}(\mu_+ - \mu_-)$  のスペクトル(図4.12、図4.14)をもとに議論する。

##### 5.1.1 強磁性配列

Co  $M_{2,3}$  吸収端と Pt  $N_{6,7}$  吸収端のMCD スペクトルの符号順は、アトミックモデルによるスペクトル、図2.2 (4) と図2.4(3) の符号順と同じである。したがって、2.1節での考察に従えば、Co/Pt 多層膜では、Co の層厚に関係なく、Co の全磁気モーメントとPt の全磁気モーメントは平行(強磁性的)に配列していると結論できる。この平行配列という結果は、CoPt<sub>3</sub> 合金の中性子回折実験で得られた結果[74] や Fe/Pt と FePt 合金の内殻MCD 実験で得られた結果[75] と同じである。

この磁気モーメントの配列については、Pt  $O_{2,3}(5p_{1/2,3/2} \rightarrow 5d)$  のMCD シグナルからも確認できる。 $O_{2,3}$  吸収端は $M_{2,3}$  吸収端と同じ $p \rightarrow d$  遷移であるから、予想されるMCD パター

ンは図2.2(3)か(4)のようになる。したがって、CoとPtの磁気モーメントに対して同じ量子化軸を取った場合、Pt  $O_{2,3}$ 吸収端のMCDパターンはCo  $M_{2,3}$ 吸収端のそれと同じ符号になる。図4.12に現れた $O_3$ 吸収端のMCDは負、図4.14の2,3MLに極弱く現れた $O_2$ 吸収端のMCDは正である。これは、図4.12のCo  $M_{2,3}$ 吸収端のMCDパターンと同符号であり、したがってCoとPtの磁気モーメントが平行に配列していると結論される。

また、SchützらはCo/Pt多層膜と $Co_{50}Pt_{50}$ 合金のPt  $L_3$ 吸収端のMCXDを測定しており、負のMCDシグナルを確認している[24]。彼女らの測定はこの吸収端のみで行われ、磁気秩序の決定にまで至らなかったが、われわれのCo  $M_{2,3}$ や $L_{2,3}$ 吸収端のMCDシグナルと合わせて考えることで、やはり同様の結論を得ることになる。本研究でCo/Pt多層膜のCoとPtの磁気秩序に関して初めて強磁性配列という明確な証拠を示したことになる。

Pt原子に磁性金属のCoが近接することにより、Co 3d軌道とPt 5d軌道が混成を起し、本来非磁性のPtが、磁氣的に活性になる。

### 5.1.2 Co 3dバンドのnarrowing

次節でCo  $L_{2,3}$ での結果(図4.18および図4.19)をもとにCoサイトの軌道角運動量( $L_z$ )の定量的議論を行うが、VUV領域のMCDスペクトル(図4.12)からも、同様の傾向が読み取れる。2.1節の図2.2で説明したように、MCDスペクトルの非対称度が増すことは、軌道角運動量の増大を意味する。試料全体を通して、 $\langle L_z \rangle = 0$ である-1:1の強度比から対称度が低くなっているが、明らかに、38MLのMCDスペクトルと2MLのMCDスペクトルの非対称度は異なっている。特に38ML, 20MLで64eV付近に現れている正のシグナルは、Co層厚の減少とともに小さくなり、2MLではほとんど見られない。したがって、図4.19(a)の傾向は図4.12にも見られる。

図4.12から読み取れる情報として、負のMCDピークの幅の変化が挙げられる。Co層の薄い試料では、Pt  $O_3$ 吸収端の負のMCDシグナルが重なるために半値幅による定量的評価はしづらいが、ピークの裾の広がりを見ることで具体的に変化していることがわかる。20MLや38MLでは約58.5~62.5eVの約4eVの範囲に負のMCDピークが見られるのに対し、2MLや3MLでは約59.5~62.5eVの約3eVの範囲に負のピークが見られ、中間のCo層厚の試料

では、そのエネルギー幅の広がりが系統的に変化している。内殻吸収スペクトルで得られるスペクトル形状は、最も単純に考えるとフェルミ面近傍の非占有状態の状態密度を反映している。内殻吸収MCD スペクトルはその非占有状態密度を異なる軌道対称性の成分へ射影したもの、即ち、非占有部分状態密度の差を反映している。最も単純には、図2.1に四角の箱の斜線をしていない部分の差を見ている。したがって、MCD スペクトルの幅は状態密度のエネルギー幅、いわゆるバンド幅に依存していると考えられる。図4.12の示すところによれば、Co層厚が薄くなるほどCo 3d 状態のバンド幅が小さくなるということになる。

このバンド幅の減少の物理的メカニズムを、図5.1[76]に示した5つのd軌道、 $d_{xy}$ ,  $d_{x^2-y^2}$ ,  $d_{yz}$ ,  $d_{zx}$ ,  $d_{3z^2-r^2}$ を用いて考える。一般に、3d 遷移金属単結晶の対称性は高く (fcc, bcc, hcp)、d 電子の結合や電荷分布は等方的である。この場合、状態密度 (DOS) やスピン磁気モーメ

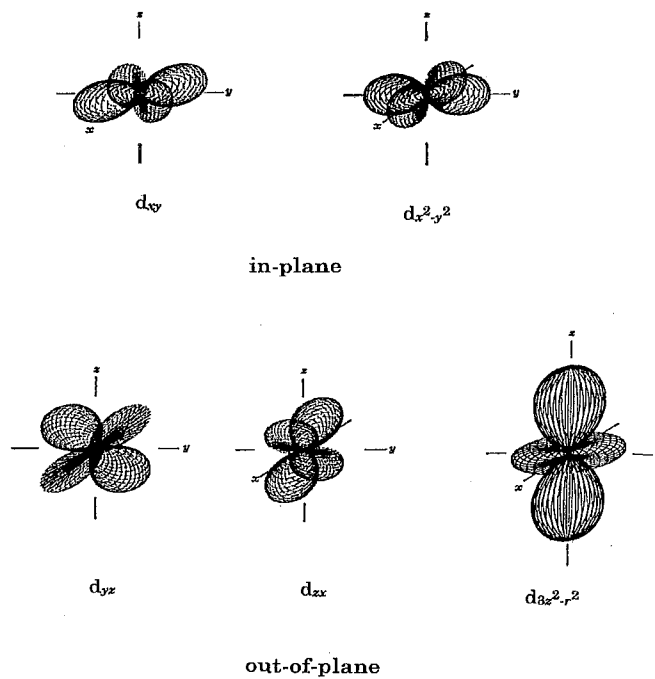


図 5.1: 立方対称場中の 3d 電子軌道。[76]

ントは5個のd軌道ではほぼ同様であると考えることができる。この様子を金属強磁性出現の簡単なモデルであるストナーモデルを用いて、図5.2(a)に示す。交換相互作用 ( $E_{ex}$ ) のた

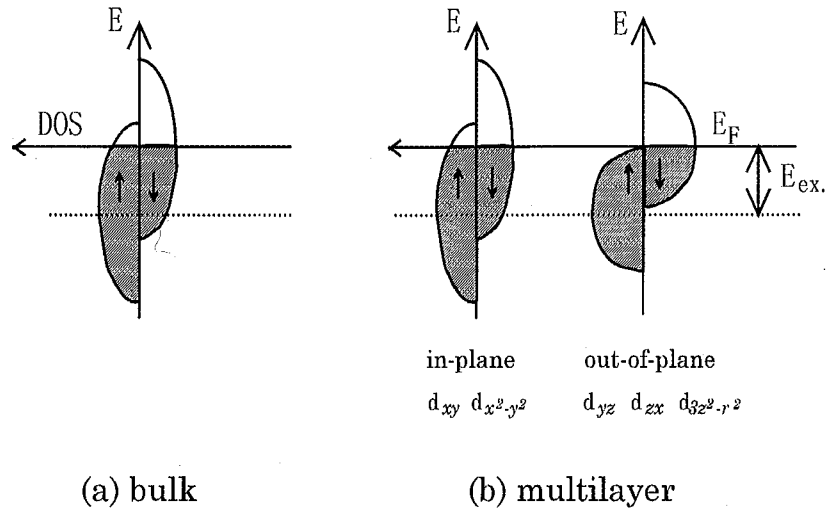


図 5.2: ストナーモデルによるバンド幅の説明。交換相互作用 ( $E_{ex}$ ) のため、上向きスピンバンドと下向きスピンバンドの重心がずれる。Co や Ni では上向きスピン状態はほぼ占有され、フェルミレベル ( $E_F$ ) は図に示したようになる。(a) 単結晶では結晶対称性が高く 5 個の d 軌道の DOS はほぼ同程度と考えられる。(b) 多層膜では積層方向 ( $z$  方向) の並進対称性が低くなり、遍歴性が小さくなる。その結果、 $z$  方向に広がりを持つ d 軌道のバンド幅が減少する。

め、上向きスピンバンドと下向きスピンバンドの重心がずれる。Co 単結晶では  $E_{ex} \simeq 2\text{eV}$  である [40, 77]。したがって、Co や Ni では上向きスピン状態はほぼ占有され、図に示したような位置にフェルミレベルがくる。

Co/Pt 多層膜中の Co 原子ではこの状況は変化し、5 個の d 軌道の寄与に違いが現れることになる。多層膜では積層方向 ( $z$  方向) の並進対称性が単結晶のそれに比べて低くなり、遍歴性が小さくなる。その結果、 $z$  方向に広がりを持つ d 軌道 (out-of-plane 軌道,  $d_{yz}$ ,  $d_{zx}$ ,  $d_{3z^2-r^2}$ ) は、中心サイトに局在するようになりバンド幅が減少すると考えられる (図 5.2(b))。

このメカニズムに従えば、図 5.2(b) に示したように多数スピン状態はより占有されるようになり、逆に少数スピン状態は非占有状態が増大することになる。その結果、多数スピン電子数と少数スピン電子数の差である  $2\langle S_z \rangle$  が増大する。図 4.19(b) で示したように、Co/Pt 多層膜でこの増大傾向が見られている。

### 5.1.3 Pt の寄与

多層膜中でのPtの役割について、Coの磁気モーメントとの強磁性結合という性質のほかに、図4.14からわかることを考察する。

38ML だけS/Nは悪いものの、それ以外の九個の試料のスペクトルは非常に類似したものとなっている。38ML も含めてPt N<sub>7</sub>とN<sub>6</sub>吸収端のMCD シグナルの比はほぼ1:-1 となっており、2.1で示した図2.4(3) を具現化したものとなっている。この結果からPtに誘起している磁気モーメントはそのほとんどがスピン磁気モーメントで、軌道磁気モーメントは凍結していることがわかる。磁気光学総和則を用いた解析を行ってみたが、MCD スペクトル(図4.14)の零レベルが明確に決まらないことや、吸収スペクトル(図4.13) からバックグラウンドを差し引くときの曖昧さなどから、誤差範囲が大きくなってしまい、定量的評価にまではつながらなかった。

光の染み込み深さ中に占めるPtの割合がCo層の厚い試料ほど小さいことを考慮すると、10個の試料全体で強度も含めてMCD スペクトルに大きな変化は見られないと言って良い。Co M<sub>2,3</sub>ではスペクトル形状に大きな変化が見られたことと比べれば、Pt N<sub>6,7</sub>で変化がないことは注目すべき結果である。前小節で、Coの3d 電子のz方向への運動がPtのポテンシャル障壁により束縛されると説明したが、当然ながらある程度はPtサイトに入り込む。即ち、Co 3d 軌道とPt 5d 軌道が界面で混成することになる。しかし、この混成の影響は界面近傍のPt原子に留まり、あまり内側の層のPtに影響は及ばないとすれば、上述したような変化のないスペクトルになると予想される。

以上、図4.13のスペクトルから、Ptは境界面付近の原子にのみスピン磁気モーメントが誘起され、系の電子構造に対して付加的な役割を担っていることがわかる。

## 5.2 2p→4s 遷移の寄与

この節では、Co L<sub>2,3</sub>のスペクトルに対する2p→4s 遷移の寄与を考えてみる。

第一原理計算によるGuoらのバンド計算[73]によれば、Co/Pt多層膜ではPt層からCo層への電荷移動は少ないとされている。したがって、3d状態への電荷の混入は4s軌道のみ

から起こることになる。磁気光学総和則の適用にあたって  $h=2.49$  という値を用いた。つまり、0.51 個の電子が 4s 軌道から 3d 軌道へ入ったことになる。ここまでで、総和則 (2.10) 式や (2.11) 式の分母にある XAS スペクトルのエネルギー積分値に占める  $2p \rightarrow 4s$  遷移の寄与 ( $I_{XAS}^{4s}$ ) を計算できる。 $2p \rightarrow 3d$  と  $2p \rightarrow 4s$  遷移に対する、(2.5) 式の動径方向の重なり積分  $\mathcal{R}$  の比を  $\alpha$  とすると、

$$I_{XAS}^{4s} = \frac{(15 - 5h)\alpha}{2h + (15 - 5h)\alpha} \quad (5.1)$$

となる。ここに、 $h=2.49$  および  $\alpha \simeq 6.5 \times 10^{-3}$  (付録 A 参照) を代入すると、 $I_{XAS}^{4s} \simeq 3.3 \times 10^{-3}$  を得る。したがって、XAS スペクトルのエネルギー積分値に占める  $2p \rightarrow 4s$  遷移の影響を取り除くには、 $(1 - 3.3 \times 10^{-3}) = 9.97 \times 10^{-1}$  を乗じればよい。

MCD スペクトルのエネルギー積分に占める  $2p \rightarrow 4s$  遷移の寄与は  $\langle L_z \rangle$  総和則と  $\langle S_z \rangle$  総和則で異なる。そもそも 4s 状態は  $\langle L_z \rangle = 0$  であることから、 $2p \rightarrow 4s$  遷移は  $\langle L_z \rangle$  総和則には影響しない。これは、図 2.5 に示したスペクトルが対称的であることからわかる。 $\langle S_z \rangle$  総和則への寄与は、4s スピン分極の様子によってことなる。スピン分極が無い場合は、図 2.5 からわかる通り、上向きスピンと下向きスピンの MCD スペクトルが正反対であることから打ち消し合うことになる。スピン分極が生じると MCD スペクトルが現れる。上向きスピンの電子数が下向き電子数よりも  $\beta$  個多いとすると、MCD スペクトルのエネルギー積分値に占める  $2p \rightarrow 4s$  遷移の寄与 ( $I_{MCD}^{4s}$ ) は

$$I_{MCD}^{4s} = -\frac{\beta\alpha}{h - \beta\alpha} \quad (5.2)$$

となる。不変の分数にマイナスがついているのは、3d 状態と同様に上向きスピンが多い ( $\beta > 0$ ) とした場合に、 $p \rightarrow s$  遷移の MCD シグナルは  $p \rightarrow d$  遷移のそれを減じる方向に現れるからである (図 2.2、図 2.5)。理論計算では、4s 状態のスピン磁気モーメントは hcp Co に対して  $-0.014$  と報告されている。したがって、 $\beta = -0.014$  として (5.2) 式を計算すると、 $I_{MCD}^{4s} = 3.7 \times 10^{-5}$  と極微小な値となる。MCD スペクトルのエネルギー積分値に占める  $2p \rightarrow 4s$  遷移の影響を取り除くには、 $(1 - 3.7 \times 10^{-5})$  を乗じれば良いが、ほとんどこれは影響が無いと言える。

XAS および MCD のそれぞれのエネルギー積分値に対する  $2p \rightarrow 4s$  遷移の寄与を考慮する

と、 $\langle L_z \rangle$ 、 $\langle S_z \rangle$  とともに、1.003 を乗じればよいことがわかる。これは非常に小さい補正であり、事実上無視できる。

## 5.3 磁気異方性

この節では、磁気光学総和則の適用により明らかになった4ML 以下での  $\langle L_z \rangle$  の急激な増大(図4.19)、そして、4~6ML 以下での明確な垂直磁気異方性(図4.3) の出現について、統一した物理的描像を考える。

### 5.3.1 tight-binding モデルによる説明

一般に、軌道磁気モーメントは原子核の回りの正味の軌道電流が存在することによって生じる。これは、図2.1(4) に示したように、ある軌道角運動量を持つ電子が、それと反対の軌道角運動量を持つ電子よりも存在確率が高くなるという、時間反転対称性の破れを要請する。磁性体においては、この対称性の破れはスピン軌道相互作用によって引き起こされる。確かに、近接原子のd 軌道間の結合を考慮することで、5 個のd 軌道に異方性が生じるが、スピン軌道相互作用が無ければ系は時間反転対称性を持ち軌道磁気モーメントを持たない。したがって、軌道磁気モーメントの大きさや方向は、d 電子間の結合のほかに、スピン軌道相互作用の大きさにも強く依存することになる。

このメカニズムを Tight-binding モデルによる一次までの摂動論で説明する [78]。3d 遷移金属では、5 個のd 殻は結晶場の影響を受けてバンドを形成し、図5.2 のようにエネルギー的に広がったd 軌道を成す。2.1 節でも仮定したように、簡単のため、交換相互作用が大きく( $\sim 2\text{eV}$ )、多数(上向き) スピン状態は全て占有されているとする。ブリルアンゾーンの対称性の高い点( $\Gamma$ )、もしくは、アトミックなモデルを考えると、Co/Pt 多層膜中の Co の 3d 軌道はこの結晶場( $\sim 1\text{eV}$ ) により図5.3 の左側に示したように分裂する。図5.1 に示したように、 $z$  方向に広がっているd 軌道( $d_{yz}, d_{zx}, d_{3z^2-r^2}$ ) の方が、 $xy$  面内に広がっているd 軌道( $d_{xy}, d_{x^2-y^2}$ ) よりも、エネルギー的に安定である。これは、Pt サイトから Co サイトへ電子が流れ込み、Pt は正に、Co は負に帯電することによって、 $z$  方向にエネルギー的に安定

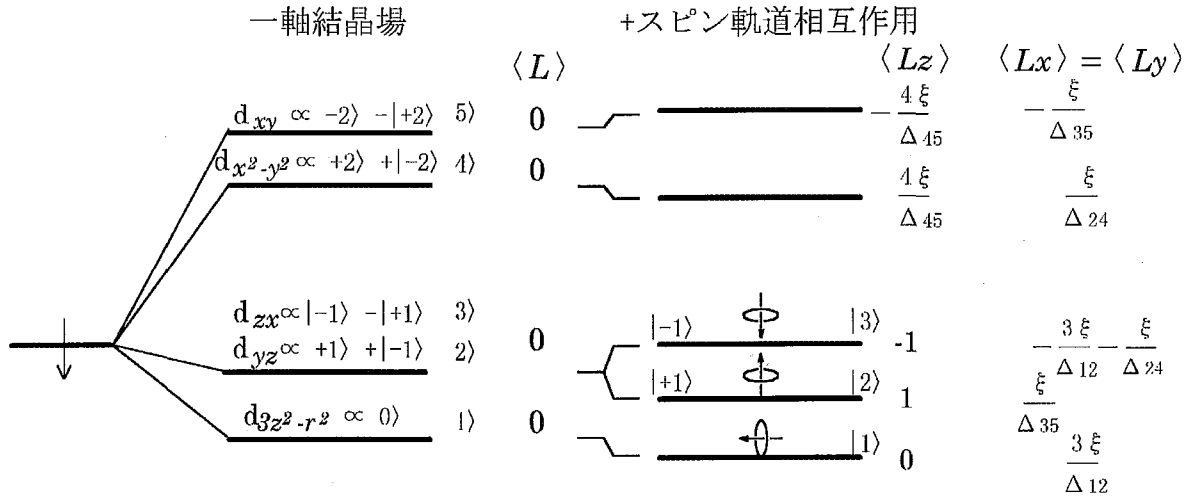


図 5.3: Co 3d 軌道のレベル図。交換相互作用が大きいと仮定して少数(下向き)スピン状態だけを考える。磁気量子数  $m_l = 2 \sim -2$  の状態  $|m_l\rangle$  の線型結合で表される5つのd軌道が、一軸結晶場で分裂し ( $|1\rangle, |2\rangle \dots |5\rangle$ )、さらにスピン軌道相互作用の摂動が働く。各状態の軌道角運動量の期待値を示した。 $|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$  については卓越した軌道角運動量の方向を示した。

な一軸結晶場が働くからである。Ptからの電子の流出については、実験事実としては5.1.3節で本来非磁性のPtの  $N_{6,7}$  吸収端にMCDが現れることから示した。Pt単体の電子配置は  $[\text{Xe}]4f^{14}5d^{10}6s^0$  でありd電子は全て占有されていることから、PtサイトからCoサイトへ電子が流れ込むことになる。また理論的には、同様な垂直磁気異方性を持つCo/Pd多層膜についてのバンド計算でPdサイトからCoサイトへ電子の移動が確かめられている[79]。(Pdの電子配置は  $[\text{Kr}]4d^{10}5s^0$ ) さらにz方向に広がる波動関数は、この一軸結晶場により、 $d_{3z^2-r^2}$  軌道の方が  $d_{yz}$  軌道と  $d_{zx}$  軌道よりも安定になる。結晶場分裂したd軌道を改めて  $|1\rangle, |2\rangle \dots |5\rangle$  と表す。(  $|2\rangle$  と  $|3\rangle$  はまだ縮退している。 )

結晶場によって分裂したこのd軌道を零次の出発点として、より小さいスピン軌道相互作用 ( $\xi \mathbf{l} \cdot \mathbf{s}$ ,  $\xi \approx 0.05 \text{ eV}$ ) を摂動として扱う。一次の摂動論によれば、摂動  $H_{s.o.}$  によるエネルギー変化  $\delta E$ 、状態  $|n\rangle$  の変化  $\delta|n\rangle$  は次式で表される。

$$\delta E = \sum_m \frac{|\langle m | H_{s.o.} | n \rangle|^2}{E_n - E_m}, \quad (5.3)$$

$$\delta|n\rangle = \sum_m \frac{\langle m|H_{s.o.}|n\rangle}{E_n - E_m} |m\rangle, \quad (5.4)$$

ここで、総和は始状態  $|n\rangle$  以外の全ての零次のd軌道について行う。非摂動状態では軌道角運動量の期待値  $\langle L_\alpha \rangle$ , ( $\alpha = x, y, z$ ) が 0 であることを考慮して  $|1\rangle, |2\rangle \dots |5\rangle$  の  $\langle L_\alpha \rangle$  を次式を用いて計算する。

$$\langle L_\alpha \rangle = \sum_m \frac{\langle n|L_\alpha|m\rangle \langle m|H_{s.o.}|n\rangle}{E_n - E_m} + \text{c.c.}, \quad (5.5)$$

$$= \xi \sum_m \frac{|\langle m|L_\alpha|n\rangle|^2}{E_n - E_m}, \quad (5.6)$$

$\Delta_{mn} = |E_m - E_n|$  とした結果を図5.3の右端に示す。一軸結晶場のもとではまだ縮退していた  $|2\rangle$  と  $|3\rangle$  はスピン軌道相互作用により縮退が解け、 $|+1\rangle$  と  $|-1\rangle$  に分裂する。これは、当然ながら  $\langle L_z \rangle$  として、+1 および -1 をそれぞれ持つ。以後、 $|+1\rangle$  と  $|-1\rangle$  の状態を改めて  $|2\rangle$  および  $|3\rangle$  とラベルする。

4.2.4節でCoの正孔数を2.49と見積もったことを考慮すると、専ら  $|1\rangle, |2\rangle$  と  $|3\rangle$  の状態が占有されることになる。垂直磁気異方性の出現と  $\langle L_z \rangle$  の増大は  $|2\rangle$  と  $|3\rangle$  の占有数に依存する。すなわち、 $|2\rangle$  の占有数が大きくなり、 $|3\rangle$  の占有数が小さくなるような場合、図5.3からわかるように  $\langle L_z \rangle$  が増大し、かつ垂直磁気異方性が出現するようになる。逆に、両者の占有数が同程度になると、 $\langle L_z \rangle$  が減少し系全体としては  $|1\rangle$  により面内磁気異方性を持つようになる。積層構造をとることで一軸結晶場が強まり、 $|1\rangle$  の面内方向に向いた軌道角運動量の期待値が小さくなり、 $|2\rangle$  と  $|3\rangle$  による  $z$  方向の軌道角運動量が系全体の磁気異方性を支配するようになる。この状況は、Co/Pt多層膜でCo層厚を薄くしていき、Coサイトでの一軸結晶場が大きくなるほど実現しやすくなる。すなわち、Co層が薄いほど、 $|2\rangle$  と  $|3\rangle$  による垂直磁気異方性が系全体を支配するようになる。

しかし、これだけでは  $\langle L_z \rangle$  の増大は起こらない。図4.3で、7ML以下で垂直磁気異方性が現れ始めているのに対し、図4.19で示したように  $\langle L_z \rangle$  の増大は4ML以下で起こっている。  $\langle L_z \rangle$  の増大のためには  $|2\rangle$  と  $|3\rangle$  の占有数に大きな差が生じる必要がある。5.1.2節で議論したCo 3dバンドのnarrowingを考えると、この状況が生まれる。図5.2に示したように、narrowingによって多数スピン状態はより占有されるようになり、逆に少数スピン状態

の正孔が増大する。すなわち、層構造をとることで、少数スピン状態から多数スピン状態へ電子が移動する。その結果、図5.3において、 $|3\rangle$ の占有率が下がることになる。さらに、narrowingを起こしているのは $|2\rangle$ ,  $|3\rangle$  ( $|1\rangle$ )であり、 $|2\rangle$ の状態を占有する電子はよりこの状態に局在するようになる。

narrowingによる少数スピン状態の電子数の減少と $|2\rangle$ の状態での局在が、 $\langle L_z \rangle$ 増大の原因となると結論できる。

少数スピン状態の電子数については、3d遷移金属の電子数がCoよりも少ないFe/Pd, Fe/Pt多層膜では垂直磁気異方性が現れているが、Ni/X(X=非磁性金属)では垂直磁気異方性が確認されていないこと<sup>1</sup>とも矛盾しない。

最後に4MLで急激な変化が起こる理由を考察する。PtとCoが混成を起こし、お互いの電子状態に影響を及ぼし合うのは界面近傍の層に留まると予想される。このことは、Pt層については5.1.3節においてPtのMCDスペクトル(図4.14)が10個の試料を通じてほとんど変化が見られないことから予想したことである。また、Co層についても、第一原理計算によるCo/Ptのバンド計算において、Ptとの混成の影響がCo層に強く現れるのは2ML程度であると考えられている[84]。幾何学的には、図5.4に示したように、4MLの場合が全ての層がPtの影響を受けている一番厚い試料になる。その後Co層の厚さが増大すると、徐々

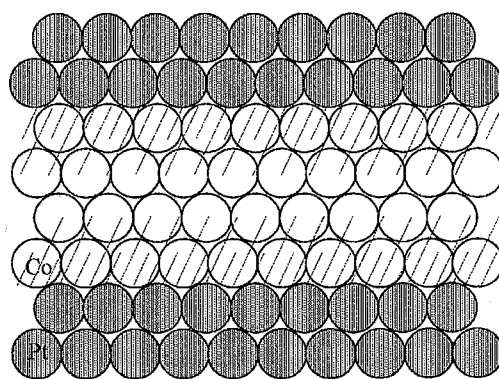


図 5.4: Co(4ML)/Pt多層膜の模式図。Pt層から2ML隔てたCo層までがPtの影響を受けると考えると、この図に示した4MLが全ての層がPtの影響を受けていると考えられる最大の厚さになる。

<sup>1</sup>Ni/Cuでは垂直磁気異方性の報告がある。[83]

にPtの影響のないバルクの状態と同じCoが増えていく。その場合、図4.19(a)の $\langle L_z \rangle$ の減少は $1/d_{\text{Co}}$ 則に従うように思われる。しかし、実際には、6ML以上でほとんど一定値を採っている。これは、4MLまではCo層の上下にあったPt層からポテンシャルを感じていたのが、6ML以上では上側もしくは下側だけからポテンシャルを感じるようになり、一軸結晶場が弱められるからと考えられる。理論によるバンド計算ではせいぜい2MLまでのCo/Pt膜の計算しかなされておらず、それ以上の磁性層厚のバンド計算は皆無である。この点を今後の理論的研究の発展に期待したい。

## 第6章

### 結論

最近新しい実験手段として世界的に注目を集め、成果を挙げつつある内殻吸収磁気円二色性実験により、垂直磁気異方性を持つCo/Pt多層膜のCo層の役割について、特に電子状態に着目しながら研究を行った。

本研究で得られた点を結果に示す。

まず、VUV領域のMCD測定の結果と磁気トルク測定からわかった点をまとめる。

1. 高周波スパッタ法により作製されたCo/Pt多層膜において、Co層厚が4ML以下で明確な垂直磁気異方性を持ち、10ML以上で面内磁気異方性を持つ。中間のCo層厚では、異方性が系統的に変化している。
2. 全てのCo/Pt多層膜で、Coの全磁気モーメントとPtの全磁気モーメントが強磁性的に結合していることを本研究で初めて明らかにした。
3. Co層の薄いCo/Pt多層膜では、非占有のCo 3dバンド幅が狭まっていることが、Co  $M_{2,3}$ 吸収端のMCDスペクトルから明らかになった。

次に、SX領域のMCD測定の結果とそれに磁気光学総和則を適用して得られた結果を以下に示す。

1. 磁気異方性の変化が起こっている4ML以下で、 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ が急激に増大することがMCDスペクトルだけから明らかになった。この結果は、XASのバックグランドや3d正孔数の見積もりなどのパラメーターに依存しない信頼性の非常に高い結果である。

2. XAS スペクトルと合わせて得られる  $\langle L_z \rangle$  も 4ML 以下で急激に増大していることが明らかになった。38ML から 6ML までは、 $\langle L_z \rangle \approx 0.13$  程度のほぼ一定値をとり、4ML で 0.15、3ML、2ML で 0.17 となる。
3.  $2\langle S_z \rangle$  では、 $\langle L_z \rangle$  ほど急激な変化は見られないものの、全体として Co 層厚の薄い試料の方が Co 層の厚いもの ( $\sim 1.52$ ) に比べて大きい ( $\sim 1.65$ )。ただし、2ML では再び小さくなっている (1.56)。これは、前述の  $\langle L_z \rangle$  の増大が 3ML で頭打ちになっていることと合わせて考えると、2ML が磁気秩序構造をとる臨界層厚であると予想される。

また、磁気異方性の変化と  $\langle L_z \rangle$  の増大およびバンド幅減少のメカニズムは以下のように考察した。なお、Co は、交換相互作用が大きく多数スピンはほぼ占有されているとして、少数スピンのみを考える。

1. 層構造をとることにより積層方向 ( $z$  軸方向) の並進対称性が単結晶よりも低下し、 $z$  軸方向に広がりを持つ d 軌道 ( $d_{yz}$ ,  $d_{zx}$ ,  $d_{3z^2-r^2}$ ) はより atomic な軌道になる。その結果バンド幅が減少する。
2. 一軸結晶場とスピン軌道相互作用により、 $\pm 1$  の  $\langle L_z \rangle$  を持つ二つの状態がフェルミ面近傍で分裂する。バンド幅の減少により、少数スピンの電子数が減少し、二つの状態の占有数に差が生じ、 $\langle L_z \rangle$  の増大と垂直磁気異方性の出現につながる。

最後に、 $\langle L_z \rangle$  の急激な増大が 4ML 以下で起こることと、10 個の試料を通して Pt N<sub>6,7</sub> の MCD スペクトルにほとんど変化がないことから、Pt と Co が混成を起こしお互いの電子状態に影響を及ぼし合うのは界面近傍の層に留まると予想される。この点を今後の理論的研究の発展に期待する。

## 付録 A

### 波動関数

#### A.1 スピン軌道相互作用を考慮した場合の波動関数。

(2.5) 式から図 2.1 下図の相対遷移確率を計算するには、始状態  $|j\rangle$  を  $|lm\rangle$  で表す必要がある。ここでは行列表現による計算法を述べる。

電子の波動関数を軌道関数とスピン関数の直積として  $\psi_{nlm}(r)\theta_{\frac{1}{2}m_s}(m_s = \pm 1/2)$  と表したとき、軌道角運動量演算子  $l$  とスピン角運動量演算子  $s$  に対し、次の関係式が成り立つ。

$$l_{\pm}\psi_{nlm} = \sqrt{l(l+1) - m(m \pm 1)}\psi_{nl(m \pm 1)}, \quad (\text{A.1})$$

$$l_z\psi_{nlm} = m\psi_{nlm}, \quad (\text{A.2})$$

$$s_{\pm}\theta_{\frac{1}{2}m_s} = \sqrt{\frac{1}{2}\left(\frac{1}{2} + 1\right) - m_s(m_s \pm 1)}\theta_{\frac{1}{2}m_s \pm 1}, \quad (\text{A.3})$$

$$s_z\theta_{\frac{1}{2}m_s} = m_s\theta_{\frac{1}{2}m_s}, \quad (\text{A.4})$$

一番簡単な p 軌道を考える。  $\psi_{n11}$ ,  $\psi_{n10}$ ,  $\psi_{n1-1}$  を基底にとれば、(A.1) 式および (A.2) 式から軌道角運動量演算子の行列表現として次式を得る。

$$l_+ = \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{2} \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad l_- = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2} & 0 \end{pmatrix}, \quad l_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.5})$$

また、スピン関数についても、

$$\theta_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \theta_{\frac{1}{2}-\frac{1}{2}} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.6})$$

とすれば、スピン角運動量演算子の行列表現、

$$s_+ = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad s_- = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad s_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.7})$$

を得る。直積表現 $\psi_{nlm}(r)\theta_{\frac{1}{2}m_s}$ を改めて $(6 \times 1)$ 基底ベクトルとして採り、スピン軌道相互作用演算子 $\mathbf{l} \cdot \mathbf{s} = 1/2(l_+s_- + l_-s_+) + l_zs_z$ を対角化することで、スピン軌道相互作用が働く場合の固有関数が求まる。以下に、図2.1の遷移確率計算に必要なp軌道のスピン軌道相互作用を考慮した固有関数 $(|jm\rangle, m \text{ は合成角運動量 } j \text{ の } z \text{ 成分})$ を示す。なお、各波動関数とも動径方向関数 $R_{nl}(r)$ は共通であるので省略し、角度依存関数 $Y_{lm}(\theta, \phi)$ のみをあらわに示す。

$$\begin{aligned} \left| \frac{3}{2} \quad \frac{3}{2} \right\rangle &= Y_{11}\alpha \\ \left| \frac{3}{2} \quad \frac{1}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{2}{3}}Y_{10}\alpha + \sqrt{\frac{1}{3}}Y_{11}\beta \\ \left| \frac{3}{2} \quad -\frac{1}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{1}{3}}Y_{1-1}\alpha + \sqrt{\frac{2}{3}}Y_{10}\beta \\ \left| \frac{3}{2} \quad -\frac{3}{2} \right\rangle &= Y_{1-1}\beta \\ \\ \left| \frac{1}{2} \quad \frac{1}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{1}{3}}Y_{10}\alpha - \sqrt{\frac{2}{3}}Y_{11}\beta \\ \left| \frac{1}{2} \quad -\frac{1}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{2}{3}}Y_{1-1}\alpha - \sqrt{\frac{1}{3}}Y_{10}\beta \end{aligned}$$

f軌道に関しても同様の手続きで計算される。以下に、結果のみを示す。

$$\begin{aligned} \left| \frac{7}{2} \quad \frac{7}{2} \right\rangle &= Y_{33}\alpha \\ \left| \frac{7}{2} \quad \frac{5}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{6}{7}}Y_{32}\alpha + \sqrt{\frac{1}{7}}Y_{33}\beta \\ \left| \frac{7}{2} \quad \frac{3}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{5}{7}}Y_{31}\alpha + \sqrt{\frac{2}{7}}Y_{32}\beta \\ \left| \frac{7}{2} \quad \frac{1}{2} \right\rangle &= \sqrt{\frac{4}{7}}Y_{30}\alpha + \sqrt{\frac{3}{7}}Y_{31}\beta \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\left|\frac{7}{2} - \frac{1}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{3}{7}}Y_{3-1}\alpha + \sqrt{\frac{4}{7}}Y_{30}\beta \\
\left|\frac{7}{2} - \frac{3}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{2}{7}}Y_{3-2}\alpha + \sqrt{\frac{5}{7}}Y_{3-1}\beta \\
\left|\frac{7}{2} - \frac{5}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{1}{7}}Y_{3-3}\alpha + \sqrt{\frac{6}{7}}Y_{3-2}\beta \\
\left|\frac{7}{2} - \frac{7}{2}\right\rangle &= Y_{3-3}\beta
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\left|\frac{5}{2} \frac{5}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{1}{7}}Y_{32}\alpha - \sqrt{\frac{6}{7}}Y_{33}\beta \\
\left|\frac{5}{2} \frac{3}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{2}{7}}Y_{31}\alpha - \sqrt{\frac{5}{7}}Y_{32}\beta \\
\left|\frac{5}{2} \frac{1}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{3}{7}}Y_{30}\alpha - \sqrt{\frac{4}{7}}Y_{31}\beta \\
\left|\frac{5}{2} - \frac{1}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{4}{7}}Y_{3-1}\alpha - \sqrt{\frac{3}{7}}Y_{30}\beta \\
\left|\frac{5}{2} - \frac{3}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{5}{7}}Y_{3-2}\alpha - \sqrt{\frac{2}{7}}Y_{3-1}\beta \\
\left|\frac{5}{2} - \frac{5}{2}\right\rangle &= \sqrt{\frac{6}{7}}Y_{3-3}\alpha - \sqrt{\frac{1}{7}}Y_{3-2}\beta
\end{aligned}$$

## A.2 動径方向積分

(2.5) 式に現れた動径方向積分  $\mathcal{R}$  について簡単に説明しておく。特に  $2p \rightarrow 4s$  遷移の寄与を考える場合に重要である。

$2p$  軌道、 $3d$  軌道および  $4s$  軌道の波動関数の動径方向成分は次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
R(\rho)_{2p} &= \frac{1}{2\sqrt{6}}\rho e^{-\rho} \left(\frac{Z}{a_0}\right)^{\frac{3}{2}} \\
R(\rho)_{3d} &= \frac{4}{81\sqrt{30}}\rho^2 e^{-\frac{\rho}{3}} \left(\frac{Z}{a_0}\right)^{\frac{3}{2}} \\
R(\rho)_{4s} &= \frac{1}{768}(192 - 144\rho + 24\rho^2 - \rho^3)e^{-\frac{\rho}{4}} \left(\frac{Z}{a_0}\right)^{\frac{3}{2}}
\end{aligned}$$

ここに、 $\rho = (Z/a_0)r$ であり、 $Z$ は原子番号、 $a_0$ はボーア半径で

$$a_0 = \frac{h^2}{4\pi m e^2} = 5.292 \times 10^{-11} \text{m}, \quad (\text{A.8})$$

である。これらの関数を用いて、 $2p \rightarrow 3d$  遷移と  $2p \rightarrow 4s$  遷移に対する動径方向積分の寄与の比を計算すると、

$$\frac{|\int_0^\infty R_{4s} r^3 R_{2p} dr|^2}{|\int_0^\infty R_{3d} r^3 R_{2p} dr|^2} \simeq 6.48 \times 10^{-3}, \quad (\text{A.9})$$

となる<sup>1</sup>。

---

<sup>1</sup>Mathematica for Windows ver2.2.3 による計算

## 付録 B

### 誘電率テンソルと反射 MCD の関係

双極子近似などで説明される遷移過程は、直接には誘電率と結びついている。そこで、反射率と誘電率の関係を示しておく。

線型応答の近似において、応答関数  $\chi(\omega)$  の実部  $\chi^r(\omega)$  と虚部  $\chi^i(\omega)$  には Kramers-Kronig の関係と呼ばれる次式が成り立つ。

$$\chi^r(\omega) - \chi_\infty = \frac{1}{\pi} \wp \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^i(\omega') d\omega'}{\omega' - \omega} = \frac{2}{\pi} \wp \int_0^{\infty} \frac{\chi^i(\omega') \omega'}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (\text{B.1})$$

$$\chi^i(\omega) = -\frac{1}{\pi} \wp \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^r(\omega') - \chi_\infty}{\omega' - \omega} d\omega' = -\frac{2\omega}{\pi} \wp \int_0^{\infty} \frac{\chi^r(\omega') - \chi_\infty}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (\text{B.2})$$

ここに、 $\chi_\infty \equiv \lim_{\omega \rightarrow \infty} \chi^r(\omega)$ ,  $\wp$  はコーシーの主値を表わし、さらに  $\chi^r(\omega) = \chi^r(-\omega)$ ,  $\chi^i(\omega) = -\chi^i(-\omega)$  の性質を用いた。この式は因果律の直接的帰結であって、きわめて一般的になりつつある関係式である。入射光の電場と反射光の電場を結び付ける応答関数である複素反射率 ( $\tilde{r} \equiv \sqrt{R}e^{i\theta}$ ) についても同様の関係式が成り立つ。実用的な式として、 $\ln \tilde{r} = (1/2) \ln R + i\theta$  の実部と虚部の間に成り立つ次式がある。

$$\theta(\omega) = -\frac{\omega}{\pi} \wp \int_0^{\infty} \frac{\ln R(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (\text{B.3})$$

(B.3) 式を用いて計算を行う場合、以下の二点に注意しなければならない。まず、測定される反射率  $R(\omega)$  は、 $\omega$  の有限の範囲に限られているので、その範囲外について適当な外挿を行う必要があるという点と、非積分関数がこのままでは  $\omega' \rightarrow \omega$  の時に発散してしまう

という点である。後者は非積分関数に恒等式、

$$\oint_0^\infty \frac{\ln R(\omega)}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' = 0, \quad (\text{B.4})$$

に加えることで解決できる。前者に対しては、なるべく低エネルギー側まで反射率を測定しておき、あとは低エネルギー側 ( $< 4\text{eV}$ ) と高エネルギー側 ( $> 100\text{eV} = E_f$ ) をそれぞれ、 $R(E) = R_0 e^{-qE}$ ,  $R(E) = R(E_f)(E/E_f)^{-p}$  で外挿した[85]。

光の直入射の場合、複素反射率は複素屈折率( $\tilde{n}$ )を用いると

$$\tilde{r} = \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1}, \quad (\text{B.5})$$

で与えられる。複素屈折率の実部( $n$ )を単に屈折率、虚部( $\kappa$ )を消衰係数と呼び、(B.5)式から、

$$n = \frac{1 - R}{1 + R - 2\sqrt{R} \cos \theta}, \quad (\text{B.6})$$

$$\kappa = \frac{2\sqrt{R} \cos \theta}{1 + R - 2\sqrt{R} \cos \theta}, \quad (\text{B.7})$$

を得る。

ここで、 $z$ 軸を異方軸とする一軸異方性を持つ媒質の誘電率テンソル $\tilde{\epsilon}$ を考える。この場合、 $z$ 軸周りの任意の回転に対して $\tilde{\epsilon}$ は不変であるから、 $\tilde{\epsilon}$ は次のように簡単になる。

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}, \quad (\text{B.8})$$

このとき媒質中での電磁波の固有伝播モードは右ネジ円偏光と左ネジ円偏光となる。それぞれのモードに対する複素屈折率を $\tilde{n}_+$  および  $\tilde{n}_-$  とすると、

$$\tilde{n}_\pm^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}, \quad (\text{B.9})$$

と表される。この $\tilde{n}_\pm$ に対しても、(B.5)式が成り立つ。したがって、左右円偏光に対する反射率を測定すれば、それぞれの偏光に対して(B.3)式を適応し、(B.5)式、(B.9)式から誘

電率テンソルが求まる。左右円偏光の複素屈折率の差が小さい場合には、各成分は次式で与えられる。

$$\varepsilon_{xx}^r = n^2 - \kappa^2, \quad (\text{B.10})$$

$$\varepsilon_{xx}^i = 2n\kappa, \quad (\text{B.11})$$

$$\varepsilon_{xy}^r = n\Delta\kappa + \kappa\Delta n, \quad (\text{B.12})$$

$$\varepsilon_{xy}^i = -n\Delta n + \kappa\Delta\kappa, \quad (\text{B.13})$$

ここで、 $n = (n_+ + n_-)/2$ ,  $\Delta n = (n_+ - n_-)$  などとした。

ところで、実際の測定においては全領域にわたって反射率測定を行っているのは左右円偏光の平均反射率だけである。これだけでは  $n$ ,  $\kappa$  しかわからない。(B.3) 式と同様な関係式が左右円偏光の反射率の差をその平均で規格化した量 ( $\Delta R/R$ ) と位相差 ( $\Delta\theta$ ) に対しても成り立つ [86]。

$$\Delta\theta(\omega) = -\frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{\omega' \frac{\Delta R}{R}(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (\text{B.14})$$

この式は、非積分関数の分子が吸収端から離れた領域ではほとんど零であるため、(B.3) 式のときに問題となった測定範囲の外挿などをしなくて済む。逆に言えば、この関係式のおかげで全領域で左右円偏光の反射率を測定しなくても良いわけである。 $\Delta R/R$  と  $\Delta\theta$  から  $\Delta n$  と  $\Delta\kappa$  が求まる。

$$\Delta n = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2}n^2 - \frac{1}{2}(1 + \kappa^2) \right\} \frac{\Delta R}{R} - n\kappa\Delta\theta, \quad (\text{B.15})$$

$$\Delta\kappa = \frac{1}{2}n\kappa \frac{\Delta R}{R} + \left\{ \frac{1}{2}n^2 - \frac{1}{2}(1 + \kappa^2) \right\} \Delta\theta, \quad (\text{B.16})$$

この式と、先の (B.12) 式、(B.13) 式から誘電率テンソルの非対角成分が求まる。

$$\varepsilon_{xy}^r = \frac{1}{2} \left( \alpha\Delta\theta + \frac{1}{2}\beta \frac{\Delta R}{R} \right), \quad (\text{B.17})$$

$$\varepsilon_{xy}^i = \frac{1}{2} \left( \beta\Delta\theta - \frac{1}{2}\alpha \frac{\Delta R}{R} \right), \quad (\text{B.18})$$

ここで、 $\alpha = n(n^2 - 3\kappa^2 - 1)$ ,  $\beta = \kappa(3n^2 - \kappa^2 - 1)$  である。

最後に、実験で測定される吸収係数と誘電率との関係を示しておく。 $\mu = (2\omega/c)\kappa$  と (B.11) 式から、

$$\mu = \frac{\mu_+ + \mu_-}{2} = \frac{\omega}{cn} \varepsilon_{xx}^i, \quad (\text{B.19})$$

となる。この式は、誘電率テンソルの対角成分の虚部が光の吸収を説明する物理量であるという結果になっている。次に (B.12) 式と (B.13) 式を用いると、

$$\Delta\mu = \mu_+ - \mu_- = \frac{2\omega}{c} \frac{n\varepsilon_{xy}^r + \kappa\varepsilon_{xy}^i}{n^2 + \kappa^2} = \frac{2\omega}{cn} \varepsilon_{xy}^r, \quad (\text{B.20})$$

を得る。最後に、真空紫外・軟X線領域において  $\kappa \ll 1 \sim n$  であることを考慮した。(B.20) 式に現れた  $\omega$  は、(2.2) 式の  $\Sigma$  の中の分母に現れた  $\omega$  と打ち消し合うことになり、その結果左右円偏光の吸収係数の差は左右円偏光による振動子強度の差を説明する物理量であると結論できる。

## 付録 C

# 光の染み込み深さと光電子全収量法

### C.1 光の染み込み深さ

光り染み込み深さ (penetration depth) について、Maxwell 方程式を用いて現象論的に説明する。

金属内部ではオームの法則にしたがって電流が発生する。電気伝導率  $\sigma$  の等方媒質では、真電荷による伝導電流は

$$i_e = \sigma E(x, t) , \quad (C.1)$$

となる。この電流を考慮して、導体内での Maxwell の方程式<sup>1</sup>を記述すると、

$$\nabla \times E(x, t) + \frac{\partial B(x, t)}{\partial t} = 0 , \quad (C.2)$$

$$\nabla \times H(x, t) - \frac{\partial D(x, t)}{\partial t} = \sigma E(x, t) , \quad (C.3)$$

$$\nabla D(x, t) = 0 , \quad (C.4)$$

$$\nabla B(x, t) = 0 , \quad (C.5)$$

これと物質方程式,

$$B(x, t) = \mu H(x, t) , \quad (C.6)$$

$$D(x, t) = \varepsilon E(x, t) , \quad (C.7)$$

---

<sup>1</sup>MKSA 単位系を用いる

を用いて、電場 $E$ についての方程式を導くと、電信方程式として知られる次式を得る。

$$\Delta E(x, t) = \mu\epsilon \frac{\partial^2 E(x, t)}{\partial t^2} + \mu\sigma \frac{\partial E(x, t)}{\partial t}, \quad (C.8)$$

いま、半無限の導体があるとする。この境界面に垂直に電磁波が入射する場合を考える。 $z < 0$ の領域を真空とし、 $z > 0$ の領域に導体があるとする。 $z$ 方向に進行する角振動数 $\omega$ の直線偏光平面波を考える。

$$E_x(z, t) = E_0 e^{i(kz - \omega t)}, \quad (C.9)$$

これを(C.8)式に代入することによって、分散公式

$$k^2 = \mu\epsilon\omega^2 + i\omega\mu\sigma, \quad (C.10)$$

を得る。ここで、 $k > 0$ の分岐をとり  $\sigma/\omega\epsilon \gg 1$ を仮定すると、

$$k = (1 + i)\sqrt{\frac{\mu\sigma\omega}{2}}, \quad (C.11)$$

となり、(C.11)式と(C.9)式から

$$E_x(z, t) = E_0 e^{i(\sqrt{\frac{\mu\sigma\omega}{2}}z - \omega t)} e^{-\sqrt{\frac{\mu\sigma\omega}{2}}z}, \quad (C.12)$$

が得られる。つまり、導体内に電磁波が入射すると、

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}}, \quad (C.13)$$

の深さのところで振幅が $1/e$ 倍になる。

ところで、(C.13)式に現れる $\sigma$ は実際には定数表などにはないため、このままでは染み込み深さの計算はできない。

Maxwell 方程式で伝導電流の項をあらわにしたため、(C.7)式に現れた $\epsilon$ は、分極電流の小さい金属では、実は真空の誘電率 $\epsilon_0$ で置き換えられる。さらに、伝導電流の項をあらわに表現せずに電束密度に取り込むようにする。これは、(C.7)式の $\epsilon$ を

$$\epsilon = \epsilon_0 \left(1 + i \frac{\sigma}{\omega\epsilon_0}\right), \quad (C.14)$$

とすればよい。屈折率を  $N = n + i\kappa$  と定義し、電磁波の領域では  $\mu = \mu_0 = 1$  であること [87] と、さらに  $\mu\varepsilon = (N/c)^2$  であることから (C.14) 式を変形すると、

$$n^2 - \kappa^2 + 2in\kappa = 1 + i\frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}, \quad (\text{C.15})$$

となり、

$$\sigma = 2\omega\varepsilon_0 n\kappa, \quad (\text{C.16})$$

を得る。(C.16) 式と (C.13) 式から次式を得る。

$$\delta(\omega) = \frac{c}{\omega\sqrt{n\kappa}}, \quad (\text{C.17})$$

ここで再び、 $\mu = \mu_0 = 1$  と  $\mu_0\varepsilon_0 = 1/c^2$  を用いた。(C.17) 中にあらわれた  $n, \kappa$  を適当な定数表を参考にして代入すれば、染み込み深さ  $\delta(\omega)$  が求まる。

## C.2 光電子全収量法

光電子全収量法で測定される物理量は吸収係数に比例したものであると考えている。この点を考察をしておく。

吸収過程は、例えば 2p 内殻電子が 3d 伝導帯へ遷移するときに光のエネルギーを受け取ると解釈できる。その吸収確率は摂動論では、

$$\sum \frac{\langle 3d | H' | 2p \rangle}{E_{2p} - E_{3d}}, \quad (\text{C.18})$$

の二乗で定義される。ここに、 $H'$  は光の摂動である。光電子全収量法で測定される物理量に対しては、この後にいくつかの過程が続く。遷移終状態で形成される 2p 内殻正孔に 3d 価電子帯の電子が落ちこみ、光を放出する。この際、3d バンドのクーロンポテンシャル ( $V_c$ ) が変化し、その効果として電子が真空準位まで飛び出してくる。(いわゆる MLL オージェ過程。) この二次過程までを (C.18) 式に従って記述すれば、

$$\sum \frac{\langle \text{vac} | V_c | 2p \rangle \langle 2p | H' | 3d \rangle}{E_{2p} - E_{3d}}, \quad (\text{C.19})$$

で与えられる。この際、真空準位へ飛び出す電子が3d伝導帯で感じるクーロンポテンシャル  $V_c$  がほぼ一定であるならば、(C.19) 式は実質的に (C.18) 式と同じになる。

表面の原子に対する吸収を考える場合はここまでの説明で十分であるが、単結晶や多層膜の場合には物質内部で放出された光電子が、散乱されながら出てくることになる。また、内部の原子に当たる光は表面の光よりも減衰している。光電子の平均自由行程を  $L$ 、吸収係数を  $\mu$  としたとき、表面から飛び出してくる光電子の量、即ち光電子全収量法で測定される物理量 ( $Y$ ) は次式で与えられることになる。

$$\begin{aligned} Y &= \text{Const.} \int_0^{\infty} e^{-\mu z} \mu e^{-\frac{z}{L}} dz \\ &= \text{Const.} \frac{\mu}{\mu + \frac{1}{L}}, \end{aligned} \quad (\text{C.20})$$

ここで、表面から内部に向かって  $+z$  の方向を定義した。  $\mu \ll 1/L$  が満たされていれば、  $Y = \text{Const.} \mu L$  となり、光電子全収量法により吸収係数が測定できることになる。例として、Co  $L_3$  吸収端 (776 eV) での Co、Pt の吸収係数はそれぞれ、  $3.1 \times 10^{-5} (\text{\AA}^{-1})$ 、  $2.6 \times 10^{-4} (\text{\AA}^{-1})$  である [89]。また、電子の平均自由行程を  $\sim 100 \text{\AA}$  程度と見積もる [88] と  $1/L \sim 1 \times 10^{-2} (\text{\AA}^{-1})$  となる。当然ながら吸収端での吸収係数が大きいことを考えると、  $\mu \ll 1/L$  は十分に満たされていると言える。したがって、本研究で Co/Pt 多層膜について行った軟 X 線領域の光電子全収量法による MCD 測定は、吸収の MCD 測定と同様の結果を得ると結論できる。

## 付録 D

# X 線回折データからの人工周期計算

### D.1 ステップモデル

多層膜における元素の散乱因子の分布を面内方向で平均化し、積層方向の一次元的な分布を考える。これはステップモデルと呼ばれる近似モデルで[90]、X 線回折像を定性的に理解する場合に有効である。以下では、多層膜の X 線回折像をこのモデルを用いて考える。

散乱ベクトル  $\mathbf{Q}$  に対し、原子系からの散乱振幅  $A$  はボルン近似より次式で与えられる。

$$A = \sum_j f_j e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_j}, \quad (\text{D.1})$$

ここで、 $f_j$  は原子散乱因子、 $\mathbf{r}_j$  は格子の位置ベクトルである。散乱ベクトル  $\mathbf{Q}$  は入射波数ベクトル  $\mathbf{k}$  と反射波数ベクトル  $\mathbf{k}'$  と、 $\mathbf{Q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$  の関係で結びついている。また、X 線の入射角を  $\theta$ 、波長を  $\lambda$  とすると、

$$|\mathbf{Q}| = 2k \sin \theta = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}, \quad (\text{D.2})$$

と書くこともできる。いま、金属  $A, B$  の単結晶を積み重ねた多層膜を考える。 $A, B$  層はそれぞれ  $n_A, n_B$  枚の原子面 (格子面) からなり、 $z$  軸方向の面間隔が一定値  $d_A, d_B$  であるとする。このとき、 $A, B$  層内の原子面の位置座標は、

$$\begin{aligned} \mathbf{r}_A &= (k_A d_A + KD) \mathbf{e}_z \quad (k_A = 0, 1, \dots, n_A - 1, \quad K = 0, 1, \dots, N - 1) \\ \mathbf{r}_B &= (k_B d_B + n_A d_A + KD) \mathbf{e}_z \quad (k_B = 0, 1, \dots, n_B - 1), \\ (n_A d_A + n_B d_B &= D) \end{aligned} \quad (\text{D.3})$$

であるから、散乱ベクトルが膜に垂直 ( $Q = Q_z e_z$ ) であるとき、多層膜全体からの散乱振幅は、(D.3) 式を (D.1) 式に代入することにより次式で与えられる。

$$A = \sum_K e^{iQ_z K D} (f_A \sum_{k_A} e^{iQ_z k_A d_A} + e^{iQ_z n_A d_A} f_B \sum_{k_B} e^{iQ_z k_B d_B}), \quad (D.4)$$

したがって、散乱強度は以下のようにになる。

$$I = |A|^2 = L(Q_z : D, N) \left\{ |f_A|^2 L(Q_z : d_A, n_A) + |f_B|^2 L(Q_z : d_B, n_B) + f_A f_B^* \sqrt{L(Q_z : d_A, n_A)} \sqrt{L(Q_z : d_B, n_B)} \cos(Q_z D/2) \right\}, \quad (D.5)$$

$$\text{ここで、} \quad L(Q_z : d, n) = \frac{\sin^2(n Q_z d/2)}{\sin^2(Q_z d/2)}$$

{ } 内の第1,2項はA, B 両層単独の構造因子の二乗であり、原子面の散乱能  $f$  の二乗に  $n_A, n_B$  枚の格子面からなる結晶のラウエ関数 ( $L(Q_z)$ ) が乗せられた式となっている。第3項は干渉項である。各層の層厚 ( $nd$ ) が大きい場合は、それぞれのブラッグ反射位置に鋭いピークが現れる。しかし、層厚が減少するとともにピークの幅が広がり、ピーク位置は一つになる。一つにまとまった基本反射のピーク位置は、各構成元素の平均面間隔  $d_{ave.}$  に対応し、次式で与えられる。

$$\frac{n_A + n_B}{d_{ave.}} = \frac{n_A}{d_A} + \frac{n_B}{d_B}, \quad (D.6)$$

これに (D.5) の  $L(Q_z : D, N)$  が畳み込まれることになる。 $L(Q_z : D, N)$  は

$$\frac{Q_z D}{2} = m\pi, \quad (m = 0, 1, 2, \dots), \quad (D.7)$$

で最大値  $N^2$  をとる。したがって、(D.6) 式で与えられる基本反射に対して、サテライトピークが次式のような位置に対称的に現れることがわかる。

$$Q_z = \frac{2\pi}{d_{ave.}} \pm \frac{2\pi m}{D}, \quad (m = 0, 1, 2, \dots), \quad (D.8)$$

$m$  次のピークのブラッグ角を  $\theta_m$  とすれば、(D.2) 式と (D.8) 式から人工周期  $D$  が以下の式で得られることがわかる。

$$\frac{1}{D} = \frac{2}{\lambda} (\sin \theta_{m+1} - \sin \theta_m), \quad (D.9)$$

## D.2 屈折率補正

(D.7) 式は (D.2) 式と組み合わせることにより、良く知られたブラッグの条件式、

$$2D \sin \theta = m\lambda, \quad (\text{D.10})$$

となる。ここで右辺に現れた  $\lambda$  は正確には媒質中での波長である。屈折率  $n$  の媒質中での X 線の波長は、真空中での波長を  $\lambda$  として、 $\lambda/n$  となる。 $n = 1 - \delta + i\beta$  と表わすと、X 線領域では  $\delta, \beta \ll 1$  である。しかし、X 線の入射角  $\theta$  が小さくなり、 $\delta, \beta$  と同程度になると (D.10) 式に対して、屈折率の補正を行う必要がある。

前節と同様のモデルを考える。 $d_A^{\text{all}} \equiv n_A d_A$  などとすると、干渉条件は次のようになる。

$$2d_A^{\text{all}} \sqrt{1 - 2\delta_A - \cos^2 \theta} + 2d_B^{\text{all}} \sqrt{1 - 2\delta_B - \cos^2 \theta} = m\lambda, \quad (\text{D.11})$$

実際の作製試料では、 $d_A^{\text{all}}, d_B^{\text{all}}$  は個別には測定できず、何らかの仮定が必要であるが。本研究においては、ここの層の厚さの比は設計値からずれないと仮定した。これは、作製チェンバー内の Kr ガス圧やスパッタ電圧などがわずかに変化したとしても、二つの金属ターゲットの蒸発レートが同じように変化すると考えられるためである。そこで、A 層の層厚比を  $x$  とすると、(D.11) 式から人工周期  $D$  を与える次式を得る。

$$D = \frac{m\lambda}{2x\sqrt{1 - 2\delta_A - \cos^2 \theta} + 2(1 - x)\sqrt{1 - 2\delta_B - \cos^2 \theta}}, \quad (\text{D.12})$$

本研究で使用了 X 線回折装置では、Cu  $K\alpha$  線を使用している。このとき Co, Pt に対する屈折率補正  $\delta$  は、それぞれ、 $2.3412 \times 10^{-5}$ ,  $5.1816 \times 10^{-5}$  である [89]。

## 参考文献

- [1] Research Report on Metallic Artificial Superlattice: Scientific Research on Priority Areas, Ministry of Education, Science and Culture (1994).
- [2] L. N. Liebermann, D. R. Fredkin, and H. B. Shore: Phys. Rev. Lett. **22** (1969) 539; L. N. Liebermann, J. Clinton, D. M. Edwards, and J. Mathon: Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 232.
- [3] L. Esaki and R. Tsu: IBM J. Res. Develop. **14** (1970) 61; 固体物理「超格子・多層膜」特集号 **21** (1986) 8.
- [4] J. B. Dinklage: J. Appl. Phys. **38** (1967) 3781.
- [5] B. J. Thaler, J. B. Ketterson, and J. E. Hilliard: Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 336.
- [6] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas: Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 2472.
- [7] P. F. Carcia, A. D. Meinhardt, and A. Suna: Appl. Phys. Lett. **47** (1985) 178.
- [8] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky and H. Sowers: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 2442; S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche: Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 2304.
- [9] F. J. Himpsel: Phys. Rev. B **44** (1991) 5966; Y. Suzuki, T. Katayama, S. Yoshida, K. Tanaka, and K. Sato: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3355; J. E. Ortega and F. J. Himpsel: Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 844.

- 
- [10] W. Geerts, Y. Suzuki, T. Katayama, K. Tanaka, K. Ando and S. Toshida: Phys. Rev. B **50** (1994) 12581.
- [11] J. Inoue and S. Maekawa: Prog. Theor. Phys. S106 (1991) 187; R. E. Camley and J. Barnaś: Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 664.
- [12] 猪俣浩一郎: 応用物理 **63** (1994) 1198; 藤森啓安, 高梨弘毅, 三谷誠司: 日本応用磁気学会誌 **19** (1995) 4; 前川禎通: 固体物理 **31** (1996) 519.
- [13] P. Bruno and C. Chappert: Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 1602.
- [14] D. M. Edwards, J. Mathon, R. B. Muniz, and M. S. Phan: Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 493; J. Phys. Condens. Matter **3** (1991) 4941; M. D. Stiles: Phys. Rev. B **48** (1993) 7238.
- [15] N. Imamura, Y. Mimura, and T. Kobayasi: Jpn. J. Appl. Phys. **15** (1976) 179; Y. Mimura, N. Imamura and T. Kobayashi: *ibid* **15** (1976) 933.
- [16] 井上順一郎, 伊藤博介: 固体物理 **30** (1995) 821.
- [17] 藤森 啓安ら編: 金属人工格子 アグネ技術センター 東京 (1995) 第2章.
- [18] C. Chappert, K. Le. Dang, P. Beauvillain, H. Hurdequint, and D. Renard: Phys. Rev. B **34** (1986) 3192.
- [19] P. F. Carcia: J. Appl. Phys. **63** (1988) 5066.
- [20] T. Sugimoto, T. Katayama, Y. Suzuki, and Y. Nishihara: Jpn. J. Appl. Phys. **28** (1989) L23333.
- [21] S. Hashimoto, Y. Ochiai, and K. Aso: Jpn. J. Appl. Phys. **28** (1989) L1824.
- [22] G. A. Bertero and R. Sinclair: J. Magn. Magn. Mater. **134** (1994) 173.

- 
- [23] W. B. Zeper, F. J. A. M. Greidanus, P. F. Carcia, and C. R. Fincher: J. Appl. Phys. **65** (1989) 4971.
- [24] G. Schütz, R. Wienke, W. Wilhelm, W. B. Zeper, H. Ebert, and K. Spörl: J. Appl. Phys. **67** (1990) 4456.
- [25] H. Ebert, S. Ruegg, G. Schütz, R. Wienke, and W. B. Zeper: J. Magn. Magn. Mater. **93** (1991) 601.
- [26] C. H. Lee, R. F. C. Farrow, C. J. Lin, E. E. Marinero, and C. J. Chien: Phys. Rev. B **42** (1990) 11384.
- [27] T. K. Hatwar, and C. F. Brucker: J. Appl. Phys. **79** (1996) 5704.
- [28] R. Wu, C. Li, and A. J. Freeman: J. Magn. Magn. Mater. **99** (1991) 71.
- [29] K. Kyuno, R. Yamamoto, and S. Asano: J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1992) 2099.
- [30] 弓野健太郎, 山本良一, 浅野攝郎: 生産研究 **45** (1993) 21.
- [31] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, and G. Materlik: Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 737.
- [32] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti: Phys. Rev. B **42** (1990) 7262.
- [33] T. Koide, T. Shidara, H. Fukutani, K. Yamaguchi, A. Fujimori, and S. Kimura: Phys. Rev. B **44** (1991) 4697.
- [34] 小出常晴: 日本物理学会誌 **47** (1992) 574.
- [35] R. T. Heap and S. J. Greaves: J. Phys. D: Appl. Phys. **27** (1994) 1343.
- [36] J. Stöhr and Y. Wu: it in New Directions in Research with Third-Generation Soft X-Ray Synchrotron Radiation Sources, edited by A. S. Schlachter and F. J. Wuilleumier (Kluwer Academic Publishers, Netherland, 1994) p.222.

- [37] 佐藤勝昭: 光と磁気 朝倉書店 東京(1988) 第4章.
- [38] ランダウ, シフシツ: 量子力学2 東京図書 東京 (1983) 第14章.
- [39] 小出常晴: 応用物理 **63** (1994) 1210.
- [40] D. A. Papaconstantopolous: Handbook of the Band Structure of Elemental Solids, Plenum (1986).
- [41] K. Kyuno: unpublished.
- [42] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette and G. van der Laan: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 1943.
- [43] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli and X. Wang: Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 694.
- [44] J. P. Crocombette, B. T. Thole and F. Jollet: J. Phys.: Condens. Matter **8** (1996) 4095.
- [45] T. Jo: J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 1814.
- [46] M. Altarelli: Phys. Rev. B **47** (1993) 597.
- [47] 物理学辞典[改訂版] 物理学辞典編集委員会編 (培風館, 東京, 1992).
- [48] 理科年表 東京天文台 編纂 (丸善, 東京, 1987).
- [49] 片山利一, 栗野博之, 西原美一: 日本応用磁気学会誌 **10** (1986) 291.
- [50] 日本物理学会 編: シンクロトロン放射 培風館 東京 (1986).
- [51] S. Yamamoto, T. Shioya, S. Sasaki and H. Kitamura: Rev. Sci. Instrum. **60** (1989) 1834.
- [52] Y. Kagoshima, S. Muto, T. Miyahara, T. Koide, S. Yamamoto and H. Kitamura: Rev. Sci. Instrum. **63** (1992) 1289.

- 
- [53] 北村英男 編集: 放射光実験施設挿入光源ハンドブック ('90) KEK Report 89-24 (1990).
- [54] B. M. Kincaid: J. Appl. Phys. **48** (1977) 2684.
- [55] T. Koide, T. Shidara and M. Yuri: Nucl. Instrum. Methods A **336** (1993) 368; T. Koide, T. Shidara, T. Miyahara and M. Yuri: Rev. Sci. Instrum. **66** (1995) 1923.
- [56] T. Koide, T. Shidara and H. Fukutani: Rev. Sci. Instrum. **63** (1992) 1462.
- [57] T. Koide, T. Shidara, H. Fukutani: Rev. Sci. Instrum. **63** (1992) 1501.
- [58] Y. Kagoshima, T. Miyahara, S. Yamamoto, H. Kitamura, S. Muto, S. -Y. Park and J. -D. Wang: Rev. Sci. Instrum. **66** (1995) 1696.
- [59] S. Yamamoto, H. Kawata, H. Kitamura, M. Ando, N. Saki and N. Shiotani: Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 2672.
- [60] S. Muto, Y. Kagoshima and T. Miyahara: Rev. Sci. Instrum. **63** (1992) 1470.
- [61] T. Katayama, W. Geerts, Y. Suzuki, D. Fujitani and N. Okuzawa: unpublished.
- [62] A. D. Buckingham and P. J. Stephens: Ann. Rev. Phys. Chem. **17** (1966) 399.
- [63] Z. Zhang, P. E. Wigen, and S. S. P. Parkin: J. Appl. Phys. **69** (1991) 5649.
- [64] R. W. G. Wyckoff: Crystal Structures. 2nd ed. Interscience New York (1963).
- [65] S. S. P. Parkin: Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 3598.
- [66] J. A. Bearden and A. F. Burr: Rev. Mod. Phys. **39** (1967) 125.
- [67] J. J. Yeh and I. Lindau: Atomic Data and Nuclear Data Tables **32** (1985) 1.
- [68] C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H. -J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin and F. Sette: Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 152.

- [69] W. L. O'Brien and B. P. Tonner: Phys. Rev. B **50** (1994) 2963.
- [70] J. Thiele, C. Boeglin, K. Hricovini, and F. Chevrier: Phys. Rev. B **53** (1996) R11934.
- [71] D. Weller, Y. Wu, J. Stöhr, M. G. Samant, B. D. Hermsmeier and C. Chappert: Phys. Rev. B **49** (1994) 12888.
- [72] R. Wu and A. J. Freeman: Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 1994.
- [73] G. Y. Guo, H. Ebert, W. M. Temmerman and P. J. Durham: Phys. Rev. B **50** (1994) 2861.
- [74] F. Menzinger and A. Paoletti: Phys. Rev. **143** (1966) 365.
- [75] T. Koide, T. Shidara, K. Yamaguchi, A. Fujimori, H. Fukutani, N. Nakajima, T. Sugimoto, T. Katayama and Y. Suzuki Phys. Rev. B **53** (1996) 8219.
- [76] 近角聰信: 強磁性体の物理(上) 裳華房 東京 (1978) p. 85.
- [77] J. Igarashi and K. Hirai: Phys. Rev. B **53** (1996) 6442.
- [78] P. Bruno: Phys. Rev. B **39** (1989) 865.
- [79] H. Itoh, J. Inoue and S. Maekawa: Phys. Rev. B **47** (1993) 5809.
- [80] J. Stohr: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **75** (1995) 253.
- [81] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly and M. F. H. Schuurmans: Phys. Rev. B **50** (1994) 9989.
- [82] D. -S. Wang, R. Wu and A. J. Freeman: J. Magn. Magn. Mater. **129** (1994) 237.
- [83] B. Schulz and K. Baberschke: Phys. Rev. B **50** (1994) 13467.
- [84] K. Kyuno: 私信.

- 
- [85] 近郷憲一, 滝沢武男: 日本大学文理学部自然科学研究所研究紀要 第14号 (1979) 1.
- [86] D. Y. Smith: J. Opt. Soc. Am. **66** (1976) 547.
- [87] L. D. Landau, E. M. Lifshitz and L. P. Pitaevskii: Electrodynamics of Continuous Media 2nd edition, Pergamon (1984) p.268.
- [88] C. R. Crowell, W. G. Spitzer, L. E. Howarth, and E. E. LaBate: Phys. Rev. **127** (1962) 2006; R. Stuart, F. Wooten, and W. E. Spicer: *ibid.* **135** (1964) A495.
- [89] B. L. Henke, E. M. Gullikson and J. C. Davis: Atomic Data and Nuclear Data Tables **27** (1982) 1; S. Sasaki:KEK Report 88-14 (1989).
- [90] A. Segmuller and A. E. Blackeslee: J. Appl. Cryst. **6** (1973) 1973; I. K. Schuller: Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1597.

# 謝辞

本研究に最大の御理解と励ましを下さった飯尾勝矩教授(東工大)に心から感謝致します。どうしても放射光実験を行いたいという私のわがままに、研究者としてのさまざまな道筋を示して下さいました御恩は生涯の喜びであります。

本論文は私が1993年から1996年まで高エネルギー物理学研究所放射光実験施設において行った研究成果を中心にまとめたものであります。同研究所の小出常晴博士、設楽哲夫助教授には、私の突然の実験参加の申し出を快く受け入れて下さっただけでなく、公私にわたり多くのことを教えて頂きました。お二人の研究者としての情熱的な姿勢と科学者としての真摯な態度は、私の物理学に対する認識を正しかるべき方向へと導いて下さいました。私の物理のほとんど全てはお二人の御指導の下で生まれたものです。ここに深く感謝いたします。

本研究に不可欠なCo/Pt多層膜の作製に対し、惜しみないの御助力を下さった片山利一博士(電総研)に感謝致します。博士には最善の試料を作るべく、さまざまなアイデアやknow-howを教えて頂きました。また、不眠不休での試料作製時の御情愛や未公開データの御提示など、筆舌に尽くし難い感謝の気持ちでいっぱいです。

Kramers-Kronig解析プログラムの作成および評価にあたり、由利正忠博士(現SRRC:台湾)、鈴木義茂博士(融合研)に御指導頂きました。感謝申し上げます。

MCD実験に際し多くの方の御協力を頂きました。同グループの宮内洋司氏(筑波大)、川辺博之氏(現講談社サイエンティフィック)には寝食をともにしてデータ取得をして頂きました。羽多野忠博士(現東北大)、朴成烈博士(現PLS:韓国)にはARでの実験を指導していただきました。宮原恒昱教授(現都立大)、竈島靖助教授(現姫工大)、加藤博雄博士(高エ研)にはMachine Timeの配分に御理解を頂きました。皆様に感謝いたします。

田中秀数助教授(東工大)、永田一清教授(現 神奈川大)を始め、旧永田研、飯尾・田中研究室の皆様にはトルク測定を手助けや磁性一般に関する議論をしていただきました。福谷博仁教授(筑波大物理)を始め同研究室の皆様、高エ研放射光コンテナハウスの皆様には、つくばでの日頃の生活から面倒を見ていただき、また、さまざまな議論をして頂きました。

皆様に改めて感謝申し上げますとともに、いつも私を支えてくれた多くの友人、知人ここに厚くお礼申し上げます。

1996年12月20日

つくばにて

中島 伸夫/Nobuo Nakajima