

## 論文の内容の要旨

氏名：佐藤 哲也

博士の専攻分野の名称：博士（工学）

論文題名：フェリ磁性 GdFeCo 多層薄膜の超短パルス光照射による極短時間加熱ならびにエネルギー散逸過程に関する研究

近年の社会における情報化の進展に伴い、生成されるデジタル情報量は増大の一途を辿っている。情報記録の大部分はハードディスクドライブ（HDD）に代表される磁気記録が担っており、大容量・高密度化の研究が活発に行われているが、高速化の研究は不十分である。現行の磁気記録原理は磁界印加による磁化反転に基づいており、さらなる高速化を図ると歳差運動に伴う強磁性共鳴限界が問題となるため、磁化動特性のより詳細な理解が重要となる。

本研究では、磁性多層薄膜の磁化ダイナミクスを超短パルス光による極短時間加熱を用いて高速に制御することを応用上の目的とし、フェリ磁性材料である GdFeCo の多層薄膜を対象に、その磁化動特性及び超短パルス光照射による極短時間加熱ならびにエネルギー散逸過程について、検討を行った。

本論文は 9 章で構成されている。第 1 章では、研究背景と研究目的、そして本論文の構成について述べている。

第 2 章では、本研究で対象としたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜材料について、その磁気特性と磁気光学効果の対応、そして薄膜の作製方法について述べている。フェリ磁性 GdFeCo は、希土類（RE: Rare Earth）と遷移金属（TM: Transition Metal）の各副格子磁化  $M_{RE}$ ,  $M_{TM}$  が反平行結合しており、差分である正味磁化  $M_{net}$  が  $M_{RE} = M_{TM}$  となり見かけ上消失する磁化補償現象を示す温度もしくは組成が存在する。そして、可視光域の光による磁気光学効果は主に  $M_{TM}$  と対応することが知られていることを説明し、本研究で用いたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料のスパッタリングによる作製法について述べた。

第 3 章では、磁化の歳差運動とクリティカルダンピング、そして超短パルス光を光源とした全光ポンプ・プローブ法による磁化ダイナミクスの計測手法について述べている。磁化歳差運動は、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式によって現象論的に表される。そして、磁化の変化が小さく実効磁界  $H_{eff}$  を一定と扱えるとき、Gilbert ダンピング定数  $\alpha = 1$  のときにクリティカルダンピング条件となり、歳差運動の緩和時間  $\tau$  が最短となる。本現象の励起・観察を行うため、本研究では中心波長 800 nm、パルス幅約 90 fs（半値全幅）の超短パルス光を光源として用いた、全光ポンプ・プローブ法による測定システムを構築した。歳差運動を励起するポンプ光と、磁気光学効果により磁化  $M$  の変化を測定するプローブ光の、試料表面への到達遅延時間  $\Delta t$  は、最小時間分解能約 3.3 fs で制御可能である。そして、本システムを用いて、本研究で作製した垂直磁化フェリ磁性 GdFeCo 薄膜において磁化歳差運動を励起・測定可能であることを示した。

第 4 章では、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化動特性について、マクロスピンモデルに基づく計算検討と磁化ダイナミクスの実時間計測による温度・組成依存性の検討の比較について述べている。 $M_{RE}$  と  $M_{TM}$  が完全に反平行結合していると仮定したマクロスピンモデルにおいて各副格子の  $g$  係数が異なるとき、磁化補償点とは異なる温度もしくは組成において、各副格子の角運動量が打ち消し合い正味の角運動量  $A_{net}$  が見かけ上消失する角運動量補償現象が生じる。そしてこの温度 ( $T_{CA}$ ) もしくは組成 ( $C_A$ ) の近傍において、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  及び歳差運動周波数  $f$  が著しい増大傾向を示す。Gd<sub>23</sub>Fe<sub>67.4</sub>Co<sub>9.6</sub> (20 nm) 試料 ( $T_{CM} \sim 200$  K) において磁化ダイナミクスの温度依存性 ( $T = 80 \sim 500$  K) を測定した結果、 $f$  は 9.8~64.0 GHz、 $\alpha_{eff}$  は 0.08~0.36 と大きく変化した。 $f$  と  $\alpha_{eff}$  は  $T \sim 240$  K 付近にて最大となり、マクロスピンモデルにおける検討とも傾向として一致することを示した。また、Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (20 nm) の組成依存性においても同様に、 $x = 23.5$  at. %にて  $\alpha_{eff} \sim 0.31$ ,  $f \sim 21$  GHz と著しい増大を確認でき、現行の HDD 用記録媒体材料である CoCrPt 系合金と比較して 10 倍~100 倍程度の高速化が見込めることを明らかとした。

第 5 章では、超短パルス光照射による GdFeCo 薄膜の極短時間加熱過程についての検討をしている。超短パルス光照射による極短時間加熱では、電子系と格子系の温度状態に過渡的非平衡が生じる。そのため、誘電体層と金属放熱層からなる下地層の構成が異なる GdFeCo 試料 SiN (60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (20 nm) / SiN (x nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (y nm) / glass sub. (Sample I: x = 5, y = 10, Sample II: x = 0, y = 10, Sample III: x = 5, y = 0) において、電子温度と主に対応する反射率変化と、磁化と対応する磁気光学効果の応答について、対応を検討した。減磁の時間スケールはいずれの層構成においても時定数 100 fs 程度で概ね一致し、電子系-格子系のエネルギー平衡化 ( $\Delta t \sim 1.1$  ps) よりも短いサブ ps の時間領域で完了する。そして、Sample II における減磁量は Sample I 及び III の約 2/3 に減少していることから、超短パルス光照射による GdFeCo の減磁が主に電子温度上昇と対応しており、隣接した金属層間で伝導電子を介したエネルギー散逸により電子温度の平衡化が生じていることを明らかとした。そして、磁化の応答は  $\Delta t \sim 6$  ps 以降において外部磁界に対し明確な依存性を示すことを確認した。これ以降の時間領域では従来から検討されてきた熱磁気特性を利用可能となることを示した。

第 6 章では、第 5 章までの検討のもと、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜に対し超短パルス光照射による極短時間加熱を行い、角運動量補償点近傍の動特性を利用した高速な磁化歳差スイッチングの励起が可能であることを実証している。ポンプ光エネルギー密度  $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では、 $\Delta t \sim 6$  ps 程度で磁化の z 軸方向成分  $M_z/M=0$  を越える。そして、磁化反転が安定するまでの時間として  $M_z/M=-0.7$  に到達する時間を指標として用いると、 $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では 100 ps 程度、 $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では 50 ps 程度であった。これは、 $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  の条件における温度状態がより  $T_{CA}$  に近く、高速応答したためと考えられる。

第 7 章では、金属層間に誘電体層を挿入した典型的金属多層薄膜を対象に、各金属層の温度状態を磁化の応答として層分離計測する方法を提案し、超短パルス光照射による極短時間加熱ならびにエネルギー散逸の過程についての解析検討を述べている。二磁性層間に SiN 中間層を挿入した GdFeCo 二層膜において、二層の磁化状態が平行 (P-state) 及び反平行 (AP-state) の条件における Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の和及び差を求めることで、各磁性層の磁化応答に分離が可能となる。このとき、超短パルス光照射による減磁量は、ポンプ光入射側の層が数倍大きい。これは、各層の光エネルギー吸収が異なり、SiN 中間層が層間での電子系のエネルギー散逸を抑制するためである。その後の格子振動を介した 2 層間での格子温度平衡化には、数 100 ps を要することが明らかとなった。また、誘電体中間層により磁気交換結合が分断された各磁性層の磁化歳差運動は独立に扱うことが可能である。そして、誘電体中間層厚を制御することで電子系-格子系平衡化後における各金属層間での温度上昇比は同等のまま、サブ ps 以内における電子温度上昇比を大きく変えることが可能であることを明らかとした。

第 8 章では、多層膜化による磁化動特性の制御性向上を目的とし、各層の磁化が反平行に磁気交換結合し、単一のヒステリシスループとして磁化が応答可能な温度・組成条件における、GdFeCo 交換結合二層膜及び Gd/FeCo 超格子薄膜の磁化ダイナミクスについて、単層 GdFeCo 薄膜との比較検討を述べている。各層の磁化は歳差運動中も強く結合しており、GdFeCo 二層膜において  $f$  及び  $\alpha_{\text{eff}}$  は単層薄膜と同様に全磁化補償温度  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}+50 \text{ K}$  付近で増大傾向を示すが、その変化幅は単層薄膜と比較して小さい。また、Gd/FeCo 超格子薄膜においては、 $f$  及び  $\alpha_{\text{eff}}$  の増大のピークが  $T_{\text{CM}}$  より高温側の領域に存在するかを確認することはできない ( $T_{\text{CM}} \doteq T_{\text{CA}}$ )。以上より、磁気交換結合した多層膜化を行うことで、単層の磁性薄膜とは異なる磁化動特性の温度依存性が発現することを示した。

第 9 章では、本研究の結論と展望について述べている。本研究では、フェリ磁性 GdFeCo 多層薄膜を対象に、その磁化動特性の温度依存性及び超短パルス光照射による極短時間加熱を用いた高速磁化制御を実証するとともに、多層薄膜内における極短時間加熱ならびに各層内・層間のエネルギー散逸過程について実験的に検討を行った。以上より、超短パルス光照射後、主として遍歴電子系により吸収された光エネルギーの、①金属層内の電子系における平衡化、②電子系から格子系へのエネルギー散逸による電子系-格子系での平衡化、③電子系-格子系平衡化後の熱拡散現象として扱える空間的エネルギー散逸による平衡化、これら各エネルギー散逸過程の時間スケールならびに磁化ダイナミクスとの対応を実験的に明らかとした。