

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

平成 27 年 1 月

日本大学大学院理工学研究科博士後期課程

電子工学専攻

佐 藤 哲 也



## 目 次

### 第1章 序論

1.1. 研究背景 .....	1
1.2. 研究目的 .....	8
参考文献 .....	10

### 第2章 希土類遷移金属アモルファス合金

#### フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の作製

2.1. はじめに .....	12
2.2. RE-TM フェリ磁性体における磁気光学 Kerr・Faraday 効果 .....	15
2.3. スパッタリング法によるフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の作製 .....	18
2.4. まとめ .....	22
参考文献 .....	22

### 第3章 超短パルス光を用いた磁化ダイナミクス計測法

3.1. はじめに .....	24
3.2. 磁化歳差運動とクリティカルダンピング .....	25
3.3. ポンプ・プローブ法による磁化歳差運動の計測法 .....	30
3.4. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における磁化ダイナミクスの計測 .....	42
3.5. まとめ .....	44
参考文献 .....	45

## 第4章 フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

### 磁化動特性の温度・組成依存性

4.1. はじめに .....	47
4.2. RE-TM フェリ磁性体における	
磁化動特性の定性的温度・組成依存性 .....	48
4.3. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における	
磁化ダイナミクスの温度依存性 .....	55
4.4. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における	
磁化ダイナミクスの組成依存性 .....	60
4.5. まとめ .....	65
参考文献 .....	66

## 第5章 超短パルス光照射による

### GdFeCo 薄膜の極短時間加熱過程

5.1. はじめに .....	67
5.2. 従来型熱アシスト磁気記録 .....	68
5.3. 熱反射法と電子-格子系の過渡的エネルギー非平衡 .....	72
5.4. 2 温度モデル .....	74
5.5. 超短パルス光に照射による GdFeCo 薄膜の極短時間加熱過程 .....	78
5.6. まとめ .....	93
参考文献 .....	93

## 第6章 フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

### 超短パルス光誘起高速歳差スイッチング

6.1. はじめに .....	96
6.2. 磁化歳差スイッチングの励起原理と ポンプ・プローブ法による反転過程の測定法 .....	97
6.3. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における 角運動量補償点利用高速歳差スイッチング .....	100
6.4. まとめ .....	106
参考文献 .....	106

## 第7章 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の

### エネルギー散逸過程と磁化ダイナミクス

7.1. はじめに .....	107
7.2. 極短時間加熱ならびにエネルギー散逸過程の層分離計測 .....	108
7.3. 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の磁化歳差運動 .....	116
7.4. 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の誘電体中間層厚依存性 .....	122
7.5. まとめ .....	131
参考文献 .....	132

## 第8章 GdFeCo 多層薄膜における

### 磁化ダイナミクスへの磁気交換結合の作用

8.1. はじめに .....	133
8.2. GdFeCo 交換結合二層膜における磁化ダイナミクス .....	134
8.3. Gd / FeCo 超格子薄膜における磁化ダイナミクス .....	144
8.4. まとめ .....	150
参考文献 .....	151

## 第9章 総括

9.1. 結論 .....	152
9.2. 本研究の展望 .....	159
参考文献 .....	162

謝辞 .....	163
----------	-----

## 付録

論文・口頭発表一覧 .....	165
-----------------	-----

## 第1章 序論

### 1.1. 研究背景

近年の社会における情報化の進展に伴い、世界で生成されるデジタル情報量は増大の一途を辿っている。米 IDC 社の調査結果によれば、図 1-1 に示すように、生成されるデジタル情報量は 2007 年にはデジタル情報の保存が可能なストレージデバイスの総容量を越えており、現在も 2 年で約 2 倍となるペースで増大している<sup>1-1), 1-2)</sup>。現時点において既に生成されるデジタル情報のうち半分程度が毎年破棄されている状況であるが、デジタル情報生成量は 2013 年の 4.4 ゼタバイト (Zetta Bytes,  $10^{21}$  Bytes) から 2020 年には 44 ゼタバイトと、さらに 10 倍規模で拡大すると予測されている<sup>1-3)</sup>。そして、図 1-2 に示す JEITA (電子情報技術産業協会) の調査・予測結果によれば、情報ストレージデバイスの占める消費電力は、取り扱われる情報量の増大に伴い、大幅な技術革新なしに現状の技術を使用し続けた場合には、2050 年には 2005 年比で、国内では約 42 倍、世界

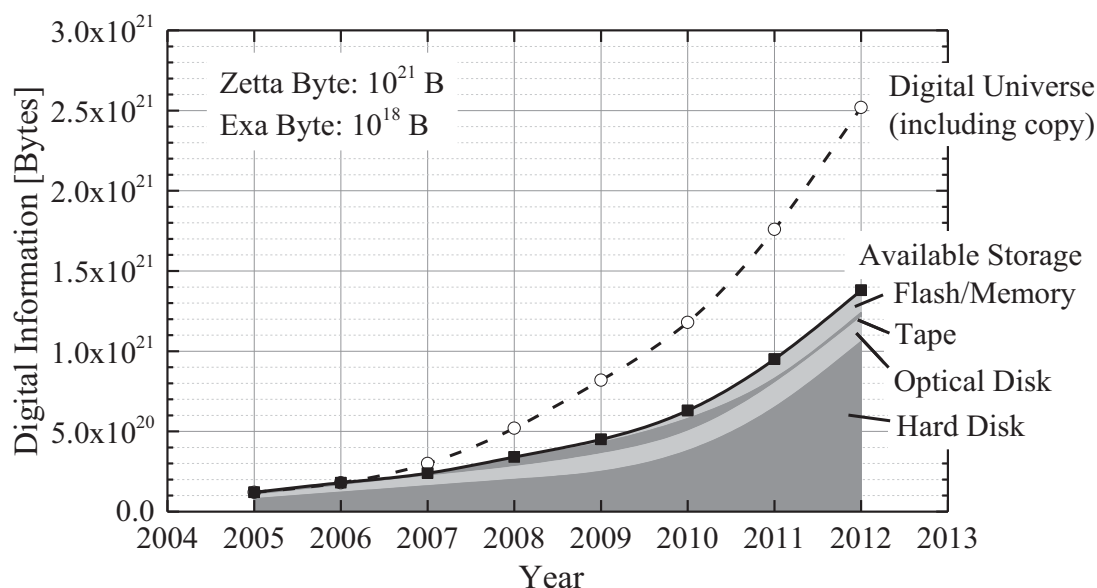


図 1-1 生成されるデジタル情報量と記録ストレージの推移<sup>1-1), 1-2)</sup>

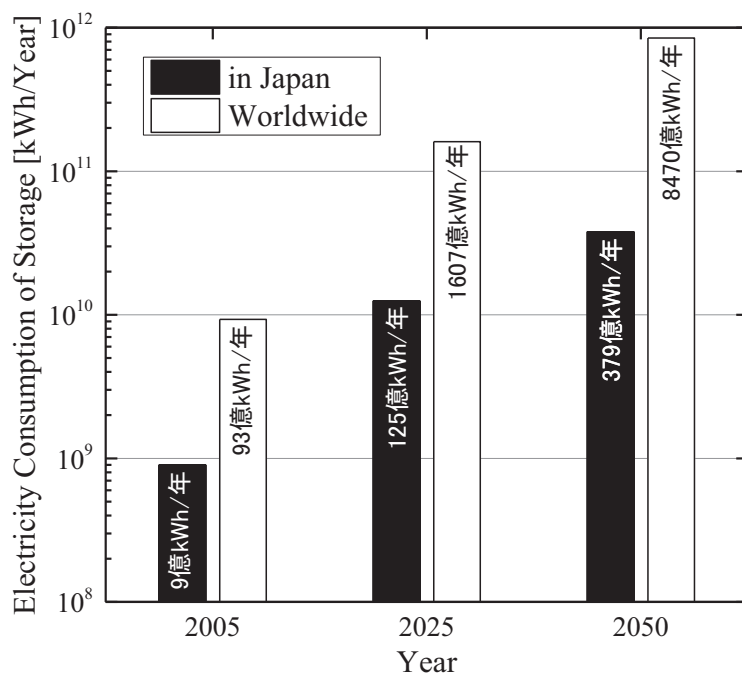


図 1-2 国内及び世界における情報ストレージの消費電力の推移予測<sup>1-4)</sup>

では約 91 倍にまで著しく増大するとされる<sup>1-4)</sup>。図 1-1 における情報ストレージデバイスの比率からもわかるように、情報記録の大部分はハードディスクドライブ (HDD: Hard Disk Drive) に代表される磁気記録デバイスが担っている。近年では、NAND 型フラッシュメモリを記録素子に用いた SSD (Solid State Drive) がランダムアクセスの高速性及び物理的駆動部を廃したことによる耐衝撃性・消費電力低減の観点で着目され、ノート型パソコンやタブレットといった小型移動デバイスにおいて特に普及が進みつつある。しかし、大容量の情報記録に用いるためには低コストであることが要求されており、また NAND 型フラッシュメモリの動作原理に起因した書き換え可能回数の上限といった制約もあるため、大容量記録においては今後も、HDD に代表される磁気記録デバイスが主であると考えられる。HDD はこれまで、大容量化という要求に対し、図 1-3 に示すように磁気ヘッドや記録メディアをはじめとする種々の技術革新によって、年率数 10% のペースで記録密度を向上させ続けてきた<sup>1-5), 1-6)</sup>。2014 年現在、HDD



用プラッタの面記録密度は実用化されたもので最高 900 Gbits / inch<sup>2</sup>程度 (2.5 インチ HDD 用プラッタ 1 枚あたり 670 GBytes) であるが<sup>1-6), 1-7)</sup>, 面記録密度の向上に伴って, 熱エネルギーの影響により記録を安定に保つことが困難となってきた。これは, 微小磁区を安定に保つために以下に示す熱安定性の式

$$\frac{K_u V}{k_B T} \geq 60 \quad (1.1)$$

を満たす必要があるためである ( $K_u$ : 垂直磁気異方性エネルギー,  $V$ : 磁区の体積,  $k_B$ : ボルツマン定数,  $T$ : 絶対温度)<sup>1-8)-1-10)</sup>。そのため, 従来型記録方式による面記録密度向上は 1 Tbit / inch<sup>2</sup>程度が限界と予測されている。これに対し, 10<sup>7</sup> erg / cc オーダーの高い垂直磁気異方性エネルギー $K_u$ を有する L1<sub>0</sub>-FePt や Co / Pt 多層膜等の媒体材料を対象に, 熱アシスト磁気記録 (HAMR: Heat-Assisted Magnetic Recording<sup>1-11)</sup> / TAMR: Thermally-Assisted Magnetic Recording<sup>1-12)</sup>) やマイクロ波アシスト磁気記録 (MAMR: Microwave-Assisted Magnetic Recording)<sup>1-13)</sup> といった記録法を用いることが提案されている。これは, 高い磁気異方性及び

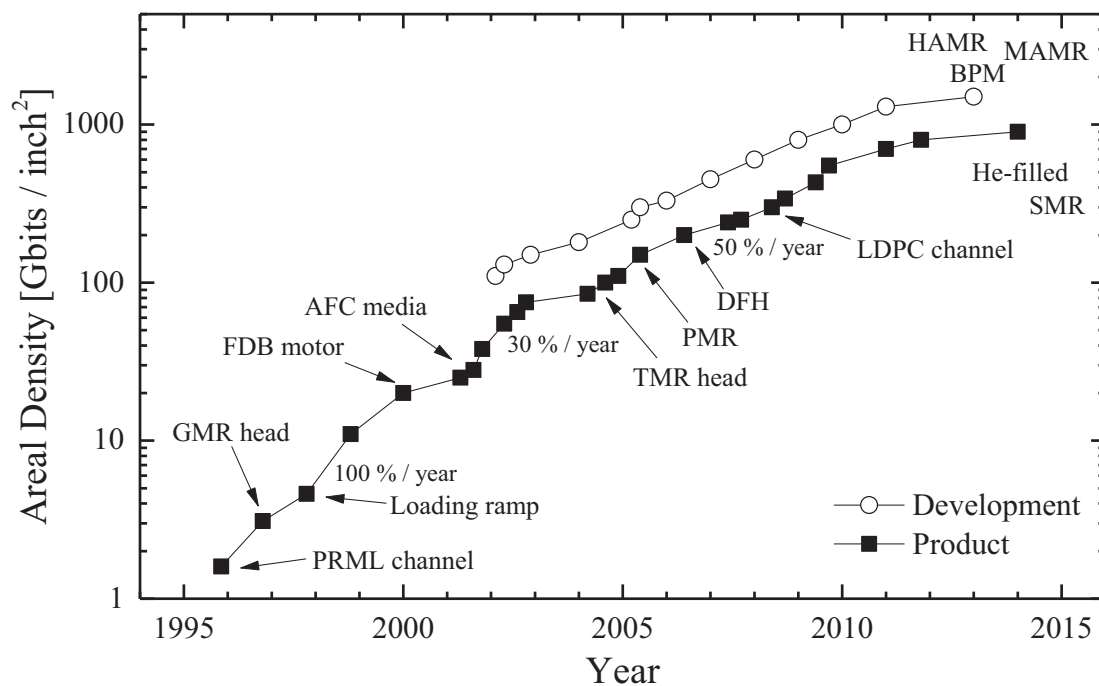


図 1-3 HDD の記録密度の動向と革新技術<sup>1-5), 1-6)</sup>

保磁力を有する媒体の記録する領域へ局所的にエネルギーアシストを行い、磁気ヘッドから印加可能な範囲まで記録に要する磁界を低減し、記録を行う方法である。これら手法により、近年では面記録密度 5 Tbits / inch<sup>2</sup> 超の次世代高密度磁気記録デバイスの実用化を目標とし、研究・開発が活発に行われている<sup>1-14)</sup>。

このように、情報ストレージの大部分を占める磁気記録デバイスにおいて、大容量・高密度化の研究が活発に行われているが、その一方で記録・再生速度の高速化に関する研究は不十分である。2003 年の地上波デジタルテレビ放送開始などに代表されるように、大容量だけでなく高い記録・再生・データ伝送速度をも要求されるデジタル情報の取り扱いも増大している。例として、フル HD (Full High Definition, 1,920×1,080 画素), 24 ビットカラー (約 1,677 万色), 60 fps の動画を劣化なく無圧縮でストレージデバイスにリアルタイム保存することを考えると、1 秒あたり 373 MB (約 3 Gbps) 程度の記録レートが要求される。しかし、現時点においてこのような高伝送レートの通信インフラや情報記録デバイスは一般には普及しておらず、伝送レートや記録時の容量を低減する必要があるため、H.264 MPEG-4 AVC や H.265 (ISO/IEC 23008-2 HEVC) などといった劣化を伴う不可逆の圧縮技術を用いているのが現状である。さらに近年では、左右それぞれの視覚情報を独立に伝送し、3 次元眼鏡の機械式シャッター機構や偏光フィルタにより分離する 3 次元立体動画放送技術も、市販のテレビやコンピュータ用ディスプレイにおいて普及しつつある。このような 3 次元立体動画放送技術においては、左右の視覚情報を独立に伝送するため、従来の 2 次元動画と比べ 2 倍のデータ伝送レートが要求される。上述した左右視覚情報を分離・伝送する 3 次元動画技術は特定の視点からの映像しか見ることが出来ないという擬似的なものであるが、ホログラム技術を応用した 3 次元「自由視点テレビ<sup>1-15)</sup>」動画技術についての研究も活発に行われており、データ伝送・記録・再生

レート向上への要求は高まる一方である。日本国内では 2014 年 6 月より、フル HD と比べ縦横それぞれ 2 倍の画素を有する 4K UHD TV (Ultra High Definition Television, 2160p, 3,840×2,160 画素) の高解像度テレビ試験放送が開始され、2016 年中には縦横それぞれ 4K のさらに 2 倍の画素となる 8K スーパーハイビジョン (Super Hi-Vision, 7,680×4,320 画素) 試験放送の開始も計画されている<sup>1-16)</sup>。総務省のロードマップによると、2018 年には 4K 及び 8K での実用放送を開始することを計画しており、またテレビ放送におけるフレームレートの 60 fps 超への引き上げに関する議論もあるなど、大容量かつ高い伝送レートを両立した通信技術及びデジタル情報記録デバイスへの要求は高まる一方である。そして、現状と比較して飛躍的に高速な記録・再生が実現した場合、記録・再生動作に要する時間が大幅に減少するため、情報ストレージの占める電力消費量の引き下げにも繋がると期待される。

HDD は従来、面記録密度の高密度化に伴い、記録ディスク (プラッタ) の回転数が等しい場合であっても、ヘッドの記録・再生部を単位時間あたりに通過する記録ビット数が増大することから、高速化もあわせて行われてきたといえる。上述のように近年までの技術革新により HDD は面記録密度が向上し続けており、その結果、現在市販されている HDD のデータ伝送レートは約 1.8 Gbps にまで到達している<sup>1-17)</sup>。しかし、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い磁気ヘッドや記録媒体材料の磁気損失が増加し磁化反転が不可能となる強磁性共鳴 (FMR: Ferromagnetic Resonance) 限界<sup>1-18)</sup>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。以下に、磁化の歳差運動挙動の現象論的表式である Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式<sup>1-19), 1-20)</sup>を示す。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M}\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad (1.2)$$

この LLG 方程式は、第1項目が運動生成項、第2項目が運動減衰項を表している。そのため、歳差運動を伴う磁化反転過程では、歳差運動周波数  $f(\propto \gamma H_{\text{eff}})$  や Gilbert ダンピング定数  $\alpha$  で特徴づけられる磁化動特性が、磁化反転時間を決定づける主要なパラメータとなる。磁化反転の緩和時間  $\tau$  は、一斉磁化回転かつ磁化の向きによらず実効磁界が一定と仮定すると、

$$\tau = \frac{1 + \alpha^2}{\alpha} \cdot \frac{1}{\omega} \quad (1.3)$$

と表すことが出来る (角周波数  $\omega = 2\pi f$ )。そのため、磁化反転時間を短縮するためには、媒体の磁化動特性を制御し、歳差運動周波数  $f$  を高め、ダンピング定数を  $\alpha = 1$  (クリティカルダンピング, 臨界制動条件) へ近づけることが求められる。しかし、市販の HDD 用記録媒体材料として一般的に用いられている CoCrPt 系合金の  $\alpha$  は 0.01~0.04 程度<sup>1-21)</sup>であり、クリティカルダンピングの条件と比べ非常に小さな値である。強磁性共鳴による歳差運動周波数は磁気回転比  $\gamma$ , 磁化  $M$ , 実効磁界  $H_{\text{eff}}$  と比例の関係にあり、既存の磁気ヘッドで印加できる磁界範囲では数 GHz 程度が限界となる。このとき、上式より磁化反転緩和時間  $\tau$  を導くと最短でもサブ ns (数 100 ps) オーダー (数 GHz 程度) であり、すでに 2 Gbps 近いデータ伝送レートに達している HDD において、現在の材料系における高速化は物理的限界に迫りつつあることがわかる。そのため、面記録密度向上やプラッタ回転数の高速化のみに頼った形での飛躍的な磁気記録速度高速化は今後困難であり、現状よりも高いダンピング特性を有する記録媒体材料が必要となる。

ここまで、磁気記録分野において、記録速度向上には磁化動特性が重要であることを述べてきたが、相互作用したスピン集団からなる磁化動特性の理解はスピントロニクス分野においても重要である。従来、磁性分野と電子の電荷情報を利用したエレクトロニクス分野は独立した分野であったが、近年ではスピントロニクスもしくはスピンエレクトロニクスと呼ばれる、電子の電荷情報と

電子スピンの自由度の双方を利用した新規デバイスの研究・開発が活発に行われるようになった。中でもスピン注入磁化反転 (Spin Transfer Torque Magnetization Switching) は、次世代高速不揮発メモリの1つである磁気抵抗ランダムアクセスメモリ (MRAM: Magnetoresistive Random Access Memory) における情報記録原理への応用が期待され、活発に研究が行われている。MRAMはデバイスに物理的駆動部が存在しないためにHDDなどの従来型磁気記録デバイスと比較して高速な記録・再生が出来るだけでなく、情報の記録に磁気を用いているため不揮発であり、情報保持のために常時電力を消費するDRAM (Dynamic Random Access Memory) と比べ省エネルギー化が実現できると期待されている。そのため、DRAMやNAND型フラッシュメモリなどの従来型半導体メモリを置き換える“ユニバーサルメモリ”への応用も念頭に、実用化に向けた研究・開発が進められている。上記MRAMの記録技術への応用を目指し研究されているスピン注入磁化反転では、発熱による記録素子の損傷防止及び省電力化の観点から、実用化のために磁化反転に要するスピン偏極電流の密度 $J_c$ を低減することが強く求められている。Slonczewskiの理論によると反転電流密度 $J_c$ は垂直磁気異方性エネルギー $K_u$ 及びGilbertダンピング定数 $\alpha$ に比例して増大する<sup>1-22)</sup>とされるが、記録した情報を保持するためには(1.1)式で示した熱安定性の式を満たすことが要求される。そのため、高密度化との両立のためには、高い $K_u$ を有し、かつ低ダンピング特性を有する磁性材料の探索が必要とされている。しかしながら、磁性分野においてはこれまで、一般に高い垂直磁気異方性エネルギー $K_u$ を有する磁性材料のダンピング定数 $\alpha$ は大きな値を示すと考えられてきた<sup>1-23)</sup>。そして、磁化の動特性は磁性材料種に依存し概ね固有の値を示すと考えられてきたが、微細な素子構造を作製した際の磁化動特性がバルク材料と比較してどのように異なるかも明確ではない。さらには、スピントルク発振器 (STO:

Spin Torque Oscillator) など, 磁化の歳差運動を直接的に利用した新規デバイスも検討されており, 磁化動的特性の決定される主要因を明らかとし, 制御手法を確立することが重要な課題といえる。

そのため近年になり, 各種磁性薄膜材料における磁化動特性計測・評価及び制御手法の確立に対する要求が高まっている。

## 1.2. 研究目的

前節で述べたように, 磁化動特性の理解及びその制御手法の確立の強い要求があるが, 各種磁性材料における動特性の主要決定要因さえ明確ではない。

これに対し本研究では, 高速磁化制御を応用上の目的とし, 温度・組成に対し磁気特性が連続的に大きくすることが知られ, 動特性も大きく変化すると期待される, 希土類 (RE: Rare Earth) 遷移金属 (TM: Transition Metal) アモルファス合金であるフェリ磁性 GdFeCo に着目した。GdFeCo は RE である Gd と TM である FeCo の各副格子磁化  $M_{RE}$ ,  $M_{TM}$  が互いに反平行に結合したフェリ磁性体であり, 各副格子磁化の温度特性が異なることから, 温度及び組成に対し正味磁化  $M_{net}$  が消失する磁化補償現象が生じることが知られている。一方, フェリ磁性体においては磁化補償現象とは別に, 各副格子磁化の有する角運動量も互いに打ち消し合い正味の角運動量  $A_{net}$  が消失する角運動量補償現象も生じると考えられ, 角運動量の減少とともに Gilbert ダンピング定数  $\alpha$  が増大傾向を示すことが近年のマクロスピンモデルによる検討から予見されている<sup>1-24)</sup>。そのため, 同系の材料において磁化動特性が広範にわたり変化することが期待される。

本研究では, 上記フェリ磁性 GdFeCo 薄膜を対象に, フェムト秒パルスレーザーを光源に用いた全光ポンプ・プローブ法により, 磁化ダイナミクスの実時間領域直接計測を行うことで, 動特性が温度・組成に対し強い依存性を有し, 角

運動量補償点の近傍にて著しい増大傾向を示すことを実験的に明らかとする。そして、超短パルス光照射による GdFeCo 薄膜の極短時間加熱プロセスを検証し、その結果のもと、媒体の広範な磁化動特性の変化を利用した、超短パルス光照射による極短時間加熱・超高速熱アシスト歳差スイッチングを励起可能であることを実証する。なお、パルス幅数 100 fs 以下の超短パルス光照射による極短時間加熱プロセスでは、金属薄膜材料中の電子が光子よりエネルギーを受け取り (電子温度の上昇)、その後格子温度へ変換されるまでの時定数よりも十分短い時間領域での励起が可能であるため、電子温度・格子温度平衡下での温度状態のみを考慮した従来の熱磁気特性に関する検討をそのまま利用することは出来ない。そのため、超短パルス光照射によるフェリ磁性 GdFeCo 多層薄膜試料の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う必要がある。

以下、第2章では、本研究で対象としたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁気特性と磁気光学効果、そして試料の作製について述べる。第3章では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測定法について述べ、第4章ではフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化ダイナミクスについて、マクロスピンモデルによる定性的温度・組成依存性の理論的検討と全光ポンプ・プローブ法により測定した温度・組成依存性の比較・検討を行い、動特性が温度・組成に対し強い依存性を有することを実験的に明らかとする。第5章では、電子温度と格子温度の応答がそれぞれ明確に異なると考えられる、層構成の異なる GdFeCo 薄膜試料に対する超短パルス光照射後の極短時間加熱・減磁過程について比較を行うことで、電子系-格子系非平衡下における磁化の応答と電子温度及び格子温度の対応を検討する。第6章では第5章までの検討を踏まえ、超短パルス光照射による極短時間加熱を利用し、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜において高速磁化歳差スイッチングが励起可能であることを実証する。第7章では、金

## 第1章 序論

属層と誘電体層からなる典型的な多層構造試料を対象に、磁化の応答を層分離計測することで、誘電体中間層を挿入した磁性金属二層膜の超短パルス光照射による極短時間加熱ならびに各層内・層間のエネルギー散逸と、各磁性層の磁化ダイナミクスについて検討する。最後に第8章では、磁気交換結合した GdFeCo 二層膜及び Gd / FeCo 超格子薄膜試料の磁化ダイナミクスについて、単層フェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料との比較・検討を行う。

これら検討により、フェリ磁性 GdFeCo 多層薄膜の磁化ダイナミクス、そして超短パルス光照射による極短時間加熱過程及びエネルギー散逸過程について実験的に明らかとする。

## 参考文献

- 1-1) NEDO 新エネルギー・産業技術総合開発機構「超先端電子技術開発」プロジェクト 「HDD の高密度化・高信頼化を実現する、垂直磁気記録方式を製品化」 株式会社日立グローバルストレージテクノロジーズ (2010).
- 1-2) J. F. Gantz "An IDC White Paper: The Expanding Digital Universe" (2007).
- 1-3) IDC Corporation "The Digital Universe of Opportunities: Rich Data and the Increasing Value of the Internet of Things" (2014).
- 1-4) 一般社団法人 電子情報技術産業協会 (JEITA) グリーン IT 推進協議会 2008 年度調査分析委員会報告書 (2009).
- 1-5) 服部正勝, 鈴木博, 菅谷誠一: 東芝レビュー **66** (8), 30-35 (2011).
- 1-6) IDEMA JAPAN (日本 HDD 協会): 2014 年・世界経済と HDD 業界展望 (2014).
- 1-7) 昭和電工株式会社 ニュースリリース「世界最大記録容量 670GB の 2.5 インチハードディスク量産開始」 (2013).
- 1-8) H. N. Bertram, H. Zhou, and R. Gustafson: *IEEE Trans. Magn.* **34**, 1845 (1998).



- 1-9) S. H. Charap, P.-L. Lu, and Y. He: *IEEE Trans. Magn.* **33**, 978 (1997).
- 1-10) D. Weller and A. Moser: *IEEE Trans. Magn.* **35**, 4423 (1999).
- 1-11) R. E. Rottmayer, S. Batra, D. Buechel, W. A. Challener, J. Hohlfield, Y. Kubota, L. Li, B. Lu, C. Mihalcea, K. Mountfield, K. Pelhos, C. Peng, T. Rausch, M. A. Seigler, D. Weller, and X. Yang: *IEEE Trans. Magn.* **42**, 2417 (2006).
- 1-12) J. J. M. Ruigrok, R. Coehoorn, S. R. Cumpson, and H. W. Kesteren: *J. Appl. Phys.* **87**, 5398 (2000).
- 1-13) C. Thirion, W. Wernsdorfer, and D. Mailly: *Nature Mat.* **2**, 524 (2003).
- 1-14) NEDO 新エネルギー・産業技術総合開発機構ニュースリリース「1 平方インチあたり 5 テラビットとなる HDD の要素技術を開発 ーストレージの大幅省エネ化可能にー」 (2012).
- 1-15) 谷本正幸: 3 次元映像フォーラム **15** (3), 17-22 (2001).
- 1-16) 一般財団法人 次世代放送推進フォーラム (NexTV-F) 設立発表会配布資料 (2013).
- 1-17) HGST 7K1000.D Datasheet (Media transfer rate: 1,822Mbps) (2011).
- 1-18) R. K. Wangness: *Phys. Rev.* **91**, 1085 (1953).
- 1-19) L. D. Landau and E. M. Lifshitz: *Phys. Z. Sowjet.* **8**, 153 (1935).
- 1-20) T. L. Gilbert: *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1955).
- 1-21) N. Inaba, Y. Uesaka, A. Nakamura, M. Futamoto, and Y. Sugita: *IEEE Trans Magn.* **33**, 2989 (1997).
- 1-22) J. C. Slonczewski: *J. Magn. Magn. Mater* **159**, L1 (1996).
- 1-23) R. Kikuchi: *J. Appl. Phys.* **27**, 1352 (1956).
- 1-24) T. Kobayashi, H. Hayashi, Y. Fujiwara, and S. Shiomi: *IEEE Trans. Magn.* **41**, 2848 (2005).

## 第2章 希土類遷移金属アモルファス合金

### フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の作製

#### 2.1. はじめに

前章で述べたように、近年になり磁化動特性の計測・評価及び制御手法の確立に対する要求が高まっているが、各種磁性材料における動特性の主要決定要因さえ明確ではない。これに対し本研究では、高速磁化制御を応用上の目的とし、温度・組成に対し磁気特性が連続的に大きく変化することが知られ、動特性も大きく変化すると期待される、希土類 (RE) と 3d 遷移金属 (TM) のアモルファス (非晶質, amorphous) 合金であるフェリ磁性 GdFeCo に着目した。本章では、本研究で対象としたフェリ磁性 GdFeCo アモルファス合金薄膜の磁気特性と磁気光学効果の基本的特徴、実験に用いた試料の作製法について述べる。

一般に希土類と 3d 遷移金属とは互いに固溶しない<sup>2-1)</sup>が、蒸着法やスパッタリング法などの気相法で急冷することでアモルファス合金が出来ることが知られている<sup>2-2)</sup>。結晶における磁気特性は結晶構造に依存して不連続に変化するが、アモルファス合金においては連続的に変化させることが可能という特徴を有する。一般に、RE-TM 合金は結晶質、非晶質に関わらず、希土類原子スピンと遷移金属原子スピンは伝導電子を介し反平行に結合する。希土類原子の全角運動量  $J$  は、軽希土類 (La, Ce, Pr, Nd, ...) では  $J = L - S$  ( $L$ : 軌道角運動量,  $S$ : スピン角運動量) であるので  $J$  と  $S$  が反平行, 重希土類 (Gd, Tb, Dy, ...) では  $J = L + S$  であるので  $J$  と  $S$  が平行となる。磁気モーメントと角運動量は逆向きの関係にあるため、希土類と 3d 遷移金属 (Fe, Co, Ni, ...) の各副格子における磁気モーメントは、軽希土類では平行結合をし (強磁性, フェロ磁性), 重希土類では反平

行結合をする (フェリ磁性)。厳密には完全平行もしくは完全反平行配列をすることは稀であり, 図 2-1 に示すように多くの場合において RE の磁気モーメントが, もしくは RE と TM 双方の磁気モーメントがともに, 円錐状に分布する<sup>2-4), 2-5)</sup>。

マクロな特性として見ると, GdFeCo において磁気モーメントの集団である RE, TM の各副格子磁化  $M_{RE}$ ,  $M_{TM}$  は反平行に結合しており, 正味磁化  $M_{net}$  はそれらの差分として考えることが出来る。RE-TM フェリ磁性体の一般的な強磁性体と大きく異なる点として, 図 2-2 に示すように反平行結合した  $M_{RE}$  と  $M_{TM}$  の温度特性が異なるために, 適当な組成範囲においてはキュリー温度  $T_c$  に到達するよりも低い温度域にて各副格子磁化が互いに打ち消し合い ( $M_{RE} = M_{TM}$ ) 正味磁化  $M_{net}$  が見かけ上消失する磁化補償温度  $T_{CM}$  が存在することが挙げられる。磁化補償温度  $T_{CM}$  近傍での磁気特性を考えると,  $M_{net} = 0$  に近づくために外部磁界から受けるトルクが減少し, 磁化の反転が困難となる (保磁力  $H_c$  が発散的に

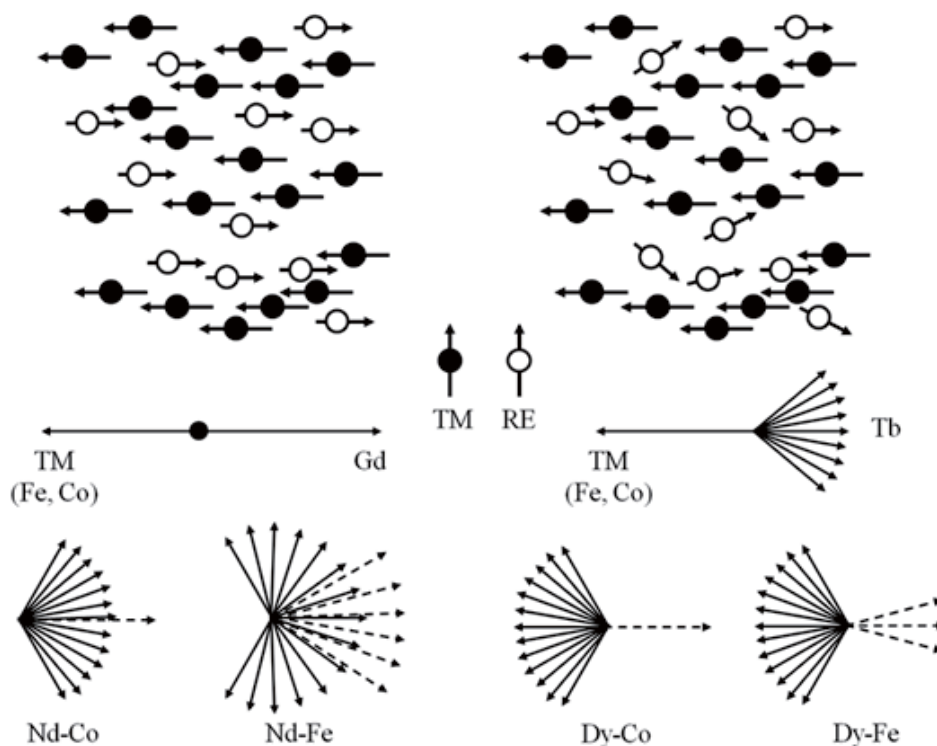


図 2-1 希土類遷移金属アモルファス合金における磁気構造<sup>2-4), 2-5)</sup>

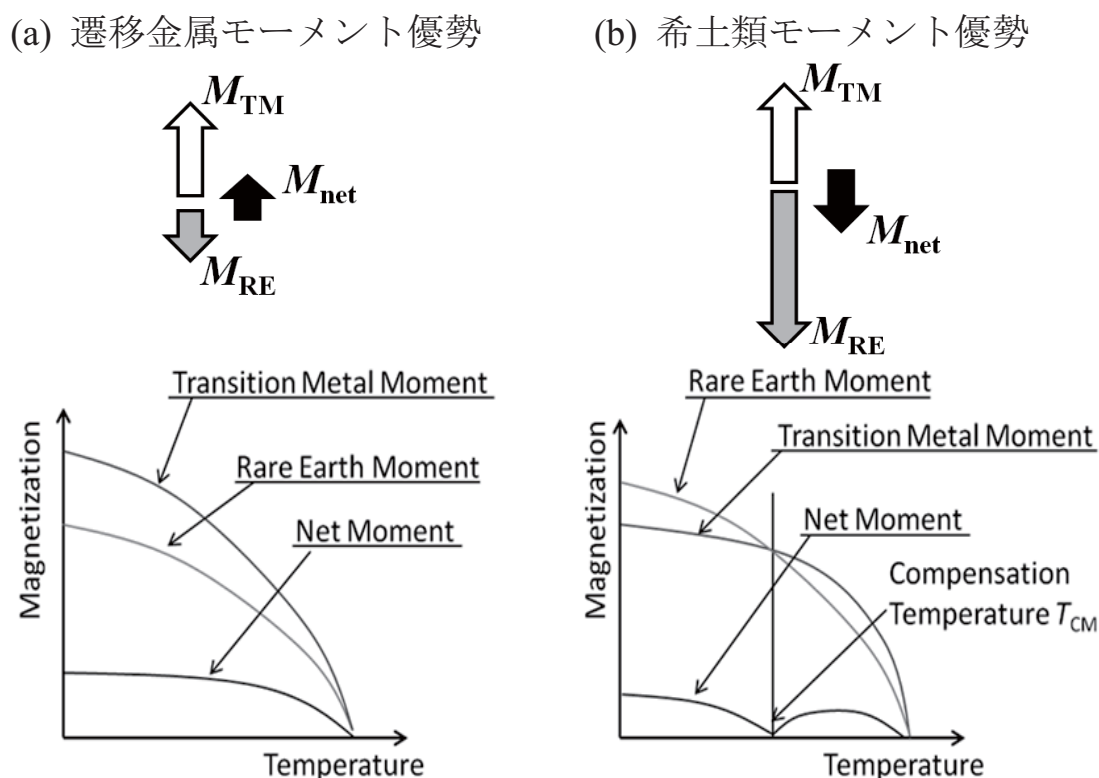


図 2-2 希土類遷移金属フェリ磁性体における副格子磁化及び正味磁化の温度特性と磁化補償現象の模式図

増大する)。重希土類と遷移金属からなる RE-TM アモルファス合金フェリ磁性体の垂直磁化薄膜は、

- (a) 要求された磁区サイズを安定に保持可能な垂直磁気異方性エネルギー  $K_u$  ( $10^6 \text{ erg/cc}$  オーダー), 保磁力  $H_c$  (数 kOe) を達成可能である。
- (b) キュリー温度  $T_c$  がレーザー加熱を行う上で適当 ( $200 \sim 300^\circ\text{C}$ ) であり, 出力数 10 mW 程度の半導体レーザーでも熱磁気記録が可能である。
- (c) アモルファスであるため, 結晶粒界に起因するノイズが小さく, 磁気特性の分散も小さい。
- (d) 組成により磁気特性を容易に制御可能である。
- (e) 実用的な S/N を得られる磁気光学効果の旋光性 (Kerr 回転角  $\theta_k$ ) を示す。

といった理由から、光磁気記録 (Magneto-Optical Recording) 用の記録媒体材料として用いられた。そして、磁区拡大再生 (MAMMOS: Magnetic Amplifying Magneto-Optical System)<sup>2-6)</sup> や DWDD (Domain Wall Displacement Detection)<sup>2-7)</sup> 等、光の回折限界以下の微小磁区を再生可能とする技術を利用し、高密度光磁気記録用の媒体にも用いられた実績がある<sup>2-8), 2-9)</sup>。

## 2.2. RE-TM フェリ磁性体における

### 磁気光学 Kerr・Faraday 効果

反射光による磁気光学 Kerr 効果 (Magneto Optical Kerr Effect) もしくは透過光による磁気光学 Faraday 効果 (Magneto Optical Faraday Effect) は、磁性材料の磁気特性評価を行う有効な方法である。磁気光学効果における旋光性や円二色性は、物質の左右円偏光に対する屈折率及び吸収率の応答差により生じる。

図 2-3 は、旋光性と円二色性について示した図である<sup>2-10)</sup>。直線偏光の電界ベクトルの軌跡は、図 2-3 (a) に示すように、振幅と回転速度が等しい右回り円偏光と左回り円偏光の合成で表される。図 2-3 (a) の直線偏光が物質を透過したとき、図 2-3 (b) のように透過光において左回り円偏光が右回り円偏光より位相が進むと、左右円偏光の合成である電界ベクトルの軌跡はもとの直線偏光より傾

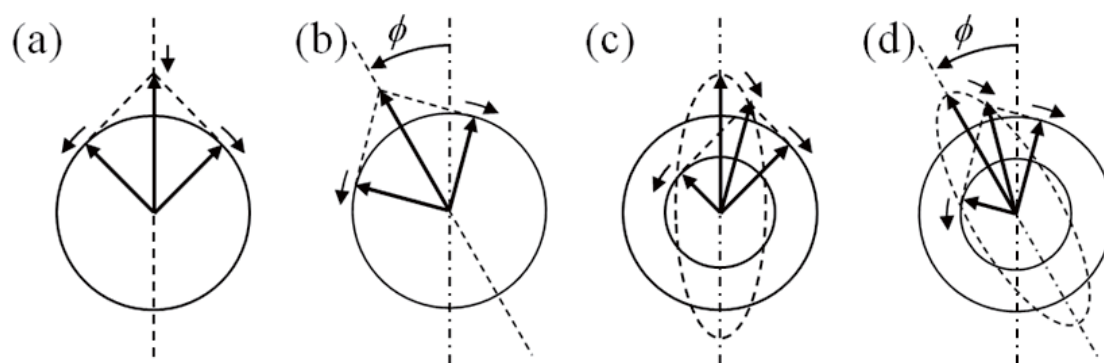


図 2-3 旋光性と円二色性<sup>2-10)</sup>

く。この傾き角 $\phi$ が旋光角 (Kerr 回転角 $\theta_K$ , Faraday 回転角 $\theta_F$ ) であり, 右回り円偏光と左回り円偏光の位相差の半分に等しい。一方, 図 2-3 (c) のように右回り円偏光と左回り円偏光のベクトルの振幅に差が生じると, それらの合成ベクトルの軌跡は楕円となる。この性質を円二色性 (CD: Circular Dichroism) と呼ぶ。楕円偏光の楕円率は楕円の短軸と長軸の長さの比の逆正接であるが, この比が小さいときは長さの比と近似できる。以上のように, 旋光性と円二色性は円偏光の位相と振幅に対する物質の応答差による。現実の物質においては, 両者は独立ではなく同時に生じることになる。そのため, 合成ベクトルは図 2-3(d) のように主軸が傾いた楕円偏光となる。

磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果の測定法として代表的なものに, 直交偏光子法 (クロスニコル法), 回転偏光子法, 振動偏光子法, ファラデーセル法, そして光弾性変調器 (PEM: Photo Elastic Modulator)<sup>2-11)-2-15)</sup>を用いた光学遅延変調法<sup>2-16)-2-19)</sup>などが挙げられる。その中でも直交偏光子法は旋光角の測定において最も標準的な方法であり, 図 2-4 に示す構成により測定が可能である。まず, 垂直磁化膜を対象として磁化容易軸方向に磁界を印加したときの, 極 (Polar) Kerr 効果もしくは Faraday 効果を測定することを考える。光の進行方向 ( $k$  ベクトル方向) と平行に磁界を印加できるよう磁極に孔を開けた電磁石を用意し, その磁極間に試料  $S$  を, 試料前後にそれぞれ偏光子  $P$ ,  $A$  を設置する。以後, 試料後に置

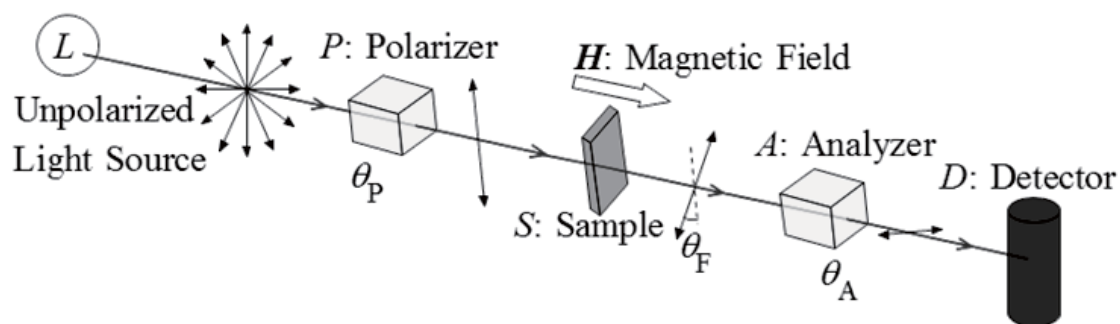


図 2-4 直交偏光子法の概略図

かれる偏光子  $A$  は検光子と呼ぶ。まず、磁界を印加していない状態において光検出器  $D$  の出力が最小となるように検光子  $A$  の角度を調整し、その後検光子  $A$  の目盛りを初期値  $\theta_0$  として読み取る。その後、磁界を印加して光検出器  $D$  の出力が最小となる目盛り  $\theta_H$  を読み取り、 $\theta_H - \theta_0$  より旋光角を求める方法である。旋光角の測定精度は検光子  $A$  の微調の精度に依存するため、あまり小さい旋光角を測定することは出来ない。以下、Faraday 効果について述べるが、Kerr 効果についても同様である。検出器  $D$  に現れる出力を  $I$ 、偏光子の方位角を  $\theta_p$ 、検光子の方位角を  $\theta_A$ 、Faraday 回転角を  $\theta_F$  とすると、

$$I = I_0 \cos^2(\theta_p + \theta_F - \theta_A) \quad (2.1)$$

と表される。偏光子の透過方向の角度  $\theta_p$  と検光子の透過方向の角度  $\theta_A$  が直交する条件 (クロスニコル) では、 $\theta_p - \theta_A = \pi/2$  となるため、本式は

$$I = I_0 \sin^2 \theta_F = \frac{I_0}{2} (1 - \cos \theta_F) \quad (2.2)$$

と表すことができる。

ここで、本研究の対象とした希土類 (RE) 遷移金属 (TM) アモルファス合金における磁気光学効果について述べる。RE-TM アモルファス合金はこれまで、主に Gd, Tb, Dy といった重希土類と Fe, Co などの遷移金属からなる合金について、実用的観点から光磁気記録用の媒体材料として研究が進められた<sup>2-20)</sup>。RE-TM アモルファス合金の可視光域での磁気光学効果は、500 nm 程度より長波長域においては主に遷移金属磁化に由来した応答を示すことが知られている。これに対し、希土類の材料種にもよるが、それより短波長の領域においては希土類磁化の磁気光学効果への寄与が増大する<sup>2-21)</sup>。軽希土類と遷移金属からなる Nd-Co, Ce-Co アモルファス合金と、重希土類と遷移金属からなる Tb-Co, Gd-Co アモルファス合金、そして f 軌道電子をもたない Y と Co の合金の磁気光学スペクトルの比較から、軽希土類は短波長域において Kerr 回転角を増強するが、重

希土類である Tb は 4f 電子の寄与が Co の寄与を打ち消す方向に働くことが報告されている<sup>2-22)</sup>。一方, Gd については可視光の全域において寄与の変化は少なく, Gd と遷移金属からなるアモルファス合金の可視光域での磁気光学効果は, 主に遷移金属に由来する<sup>2-22), 2-23)</sup>。このことは, 希土類遷移金属アモルファス合金におけるバンド構造の計算的アプローチからも報告されている<sup>2-24), 2-25)</sup>。

### 2.3. スパッタリング法による

#### フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の作製

本研究で用いたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料は, スパッタリング法により作製を行った。スパッタリング現象は, 物質が高速粒子の衝突により, 原子あるいは分子状ではじき出される現象である。所望の材料 (ターゲット) よりはじき出される原子あるいは分子を基板上に堆積させるのが, スパッタリングによる製膜方法である。スパッタリング法は, 真空蒸着法と比較して基板と薄膜の付着力が強く, 材料の選択範囲が広い, 多元製膜において組成制御が容易, 広い面積において組成等の再現性が高い, といった特徴を有している。

本研究では, 株式会社アルバックの枚葉式スパッタリング装置 SMO-01 特型を用い, 薄膜試料の作製を行った。スパッタガスには Ar を用い, GdFeCo 磁性層の製膜は DC マグネトロンスパッタ法により各元素 (4f 希土類である Gd 及び 3d 遷移金属である Fe, Co) ターゲットを共スパッタリング (co-sputtering) し, 電力にて組成の制御を行った。また, Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 層及び窒化シリコン (SiN) 層は RF マグネトロンスパッタ法により作製した。SiN 層はスパッタガスの Ar に N<sub>2</sub> ガスを混合し, 反応性スパッタリングにより作製している。以下に, GdFeCo 磁性層, Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 層及び SiN 層の製膜条件を記す。



## 第2章 希土類遷移金属アモルファス合金フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の作製

### 磁性層 (フェリ磁性 GdFeCo 層)

製膜方法 : DC マグネトロンスパッタ法による各元素ターゲットの共スパッタ

使用ターゲット : Gd, Fe, Co

チャンバーの到達真空度 :  $1.3 \times 10^{-5}$  Pa

Ar ガス流量 : 50.9 sccm

ガス圧 :  $6.9 \times 10^{-1}$  Pa

### Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 層

製膜方法 : RF マグネトロンスパッタ法

使用ターゲット : Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 合金ターゲット

チャンバーの到達真空度 :  $1.4 \times 10^{-5}$  Pa

Ar ガス流量 : 54.8 sccm

ガス圧 :  $3.8 \times 10^{-1}$  Pa

### 窒化シリコン (SiN) 層

製膜方法 : RF マグネトロンスパッタ法による反応性スパッタ

使用ターゲット : Si

チャンバーの到達真空度 :  $1.4 \times 10^{-5}$  Pa

Ar ガス流量 : 15.0 sccm

N<sub>2</sub> ガス流量 : 6.0 sccm

ガス圧 :  $1.8 \times 10^{-1}$  Pa

作製した GdFeCo 薄膜の磁気特性は、磁気光学 Kerr 効果 / Faraday 効果及び SQUID-VSM (Superconducting QUantum Interference Device - Vibrating Sample

Magnetometer) により測定を行った。SQUID-VSM の測定には、Quantum Design 社製 MPMS3 を用いた。上記製膜条件にて作製したフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の典型的な磁気特性として、SiN (60 nm) / Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub.の磁気光学 Kerr ヒステリシスループ測定結果を図 2-5 に示す((a):  $x = 22$ , (b):  $x = 27$ )。磁界は試料膜面に対し垂直に印加し、測定波長は 600 nm とした。縦軸は Kerr 回転角  $\theta_k$  である。結果より、良好な垂直磁化 GdFeCo 薄膜を作製出来ていることが確認できる。図 2-5 (a) の Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (20 nm) 薄膜試料は室温にて遷移金属磁化  $M_{TM}$  が希土類磁化  $M_{RE}$  に対し優勢の磁気特性を示しており、反平行結合した遷移金属磁化  $M_{TM}$  と希土類磁化  $M_{RE}$  の差である正味磁化  $M_{net}$  は  $M_{TM}$  と同方向である。一方で、図 2-5 (b) の Gd<sub>27</sub>Fe<sub>63.9</sub>Co<sub>9.1</sub> (20 nm) 薄膜試料は室温にて  $M_{RE}$  が  $M_{TM}$  に対し優勢であり、 $M_{net}$  と磁気光学効果にて測定している  $M_{TM}$  が逆方向の関係にあるが、外部磁界によるトルクは  $M_{net}$  に対して働くため、磁気光学ヒステリシスループの外部磁界に対する応答が逆符号となる。そのため、SQUID-VSM 等による  $M_{net}$  の測定と磁気光学効果による  $M_{TM}$

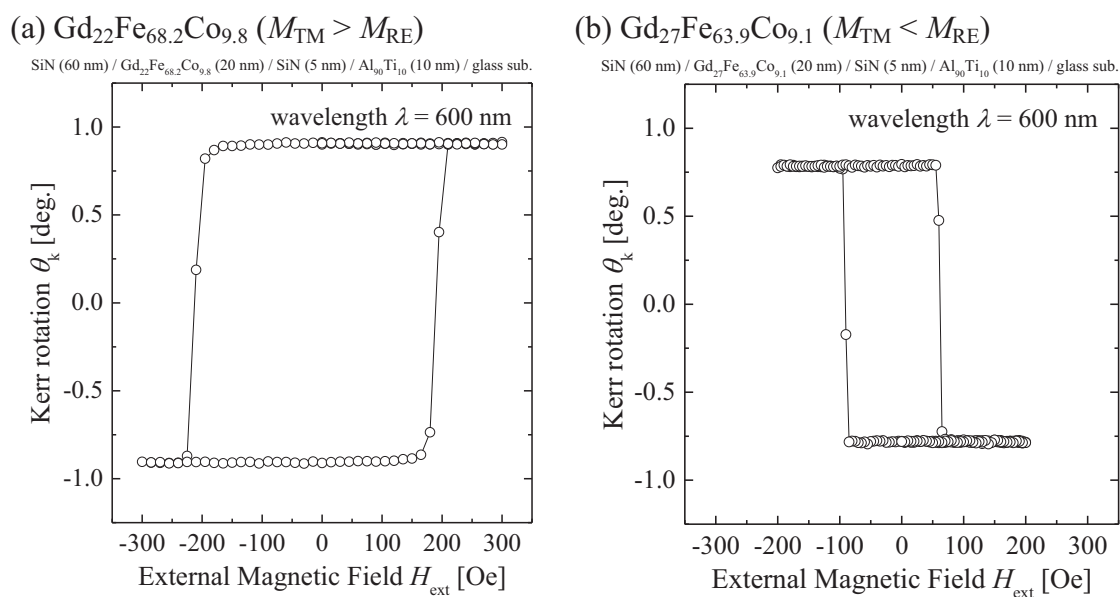


図 2-5 スパッタリング法により作製した GdFeCo 薄膜の磁気光学 Kerr 効果により測定した磁気光学ヒステリシスループ

の測定でも,  $M_{RE} > M_{TM}$  の条件においてヒステリシスループの外部印加磁界に対する応答が逆符号となることに注意が必要である。

次に, 同様の条件で作製した SiN (60 nm) /  $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$  (20 nm) / SiN (5 nm) /  $Al_{90}Ti_{10}$  (10 nm) / glass sub. 薄膜の, RE-TM 組成比に対する磁気特性の変化を評価した。図 2-6 に, 磁気光学 Kerr 効果により測定した, 室温における保磁力  $H_c$  及び磁化補償温度  $T_{CM}$  の組成依存性を示す。試料温度は室温 $\sim$ 300°Cの範囲で大気中にて制御して測定を行ったため,  $T_{CM}$  は室温にて希土類 (RE) である Gd の磁化  $M_{RE}$  が遷移金属 (TM) である FeCo の磁化  $M_{TM}$  に対し優勢 (RE-rich) の特性を示す試料についてのみプロットを行っている。結果より,  $H_c$  及び  $T_{CM}$  が組成に対し連続的に変化しており, 良好なアモルファス合金薄膜が作製できていると考えられる。また,  $H_c$  は Gd (RE) 組成  $x \sim 24.2$  at. % 付近で最大となっていることを確認できる。これは,  $M_{net}$  の減少に伴い外部磁界より受けるトルクも減少するためであり, FeCo (TM) 磁化  $M_{TM}$  と対応する磁気光学 Kerr ヒステリシスループの符号も Gd 組成  $x \sim 24.2$  at. % 付近を境に反転するため, 反平行結合し

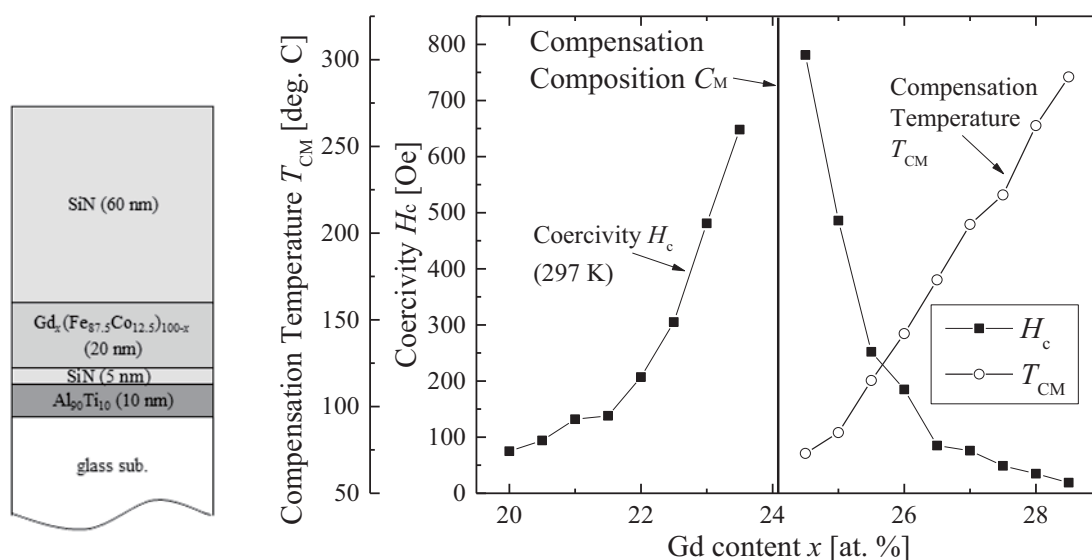


図 2-6 スパッタリング法により作製した SiN (60 nm) /  $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$  (20 nm) / SiN (5 nm) /  $Al_{90}Ti_{10}$  (10 nm) / glass sub. の室温における保磁力  $H_c$  及び磁化補償温度  $T_{CM}$  の組成依存性

た RE 磁化  $M_{RE}$  と TM 磁化  $M_{TM}$  が打ち消し合い差分である正味磁化  $M_{net}$  が消失する磁化補償組成  $C_M$  (磁化補償温度  $T_{CM} =$  室温  $\sim 24^\circ\text{C}$ ) が, Gd 組成  $x \sim 24.2$  at.% 付近に存在するといえる。

## 2.4. まとめ

本章では, 本研究で対象としたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜について, 磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果と各副格子磁化の対応について述べた。また, マグネトロンスパッタ法により作製したフェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料の典型的磁気特性として, 保磁力と磁化補償温度の組成に対する依存性を示した。

## 参考文献

- 2-1) M. P. Dariel, J. T. Holthuis, and M. R. Pickus: *Less-Common Metals* **45**, 91 (1976).
- 2-2) 片山利一: 日本金属学会会報 **24**, 1649 (1985).
- 2-3) 近角聰信: 裳華房 物理学選書 4 「強磁性体の物理 (上) -物質の磁性-」 §3 原子の磁気モーメント, 第20版 (2003).
- 2-4) R. C. Taylor, T. R. McGuire, J. M. D. Coey, and A. Gangulee: *J. Appl. Phys.* **49**, 2885 (1978).
- 2-5) J. M. D. Coey: *J. Appl. Phys.* **49**, 1659 (1978).
- 2-6) Y. Nurakami, N. Iketani, J. Nakajima, A. Takahashi, K. Ohta, and T. Ishikawa: *J. Magn. Soc. Jpn.* **17** (S1), 201 (1993).
- 2-7) T. Shiratori, E. Fujii, Y. Miyaoka, and Y. Hozumi: *J. Magn. Soc. Jpn.* **22** (S2), 47 (1998).

- 2-8) H. Awano, S. Imai, M. Sekine, M. Tani, N. Ohta, K. Mitani, N. Takagi, H. Noguchi, and M. Kume: *IEEE Trans. Magn.* **36**, 2261 (2000).
- 2-9) F. Izawa, S. Ozawa, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, and A. Itoh: *Trans. Magn. Soc. Jpn.* **4**, 314 (2004).
- 2-10) 佐藤勝昭: 現代人の物理 1 「光と磁気」改訂版 第4刷, 朝倉書店 (2007).
- 2-11) 小川智哉: 応用物理 **26**, 259 (1957).
- 2-12) 小川智哉: 応用物理 **28**, 321 (1959).
- 2-13) T. Ogawa: *J. Acoust. Soc. Am.* **30**, 46 (1958).
- 2-14) J. C. Kemp: *J. Opt. Soc. America* **59**, 950 (1969).
- 2-15) 福田敦夫: 固体物理 **8**, 35 (1973).
- 2-16) L. F. Mollenauer, D. Downie, H. Engstrom, and W. B. Grant: *Appl. Opt.* **8**, 661 (1969).
- 2-17) S. N. Jasperson and S. E. Schnatterly: *Rev. Sci. Instr.* **40**, 761 (1969).
- 2-18) K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, 2403 (1981).
- 2-19) K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, Y. Tosaka, M. Watanabe, K. Takanashi, and H. Fujimori: *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 989 (1993).
- 2-20) 今村修武: 日本応用磁気学会誌 **8**, 345 (1984).
- 2-21) T. Katayama and K. Hasegawa: *Proc. 4th Int. Conf. Rapidly Quenched Metals*, Sendai, 915 (1981).
- 2-22) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (S1), 273 (1987).
- 2-23) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).
- 2-24) H. Tanaka and S. Takayama: *J. Appl. Phys.* **67**, 5334 (1990).
- 2-25) 田中宏志, 高山新司, 藤原毅夫: 日本応用磁気学会誌, **15**, 221 (1991).

## 第3章 超短パルス光を用いた磁化ダイナミクス計測法

### 3.1. はじめに

序論で述べたように、磁性媒体の磁化動特性評価及びその積極的制御手法の確立は、磁気記録分野のみならず、スピントロニクス分野においても重要な要求である。前章では、本研究で対象とした希土類遷移金属アモルファス合金のフェリ磁性 GdFeCo 薄膜について、磁気光学効果と各副格子磁化の対応、作製した薄膜試料の典型的磁気特性について示した。

磁性薄膜の磁化動特性は、マイクロ波キャビティやコプレーナ伝送線路 (CPW: Coplanar Waveguide) による強磁性共鳴 (FMR: Ferromagnetic Resonance) 測定から評価することが一般的である<sup>3-1)-3-7)</sup>。前者では、マイクロ波周波数の外部磁界を試料に印加することで歳差運動を励起し続け、FMR スペクトラムの共鳴吸収ピーク幅 $\Delta H$ から実効的に Gilbert ダンピング定数 $\alpha$ を導出する<sup>3-1), 3-2)</sup>。この方法では試料全体のマクロな特性を間接的に得ることしか出来ず、試料サイズが小さいと検出感度も不足する。また、マイクロ波発生器により生成可能なマイクロ波周波数範囲が限定されることから、1つのシステムで測定できる歳差運動の周波数も限定される。一方、後者 (CPW-FMR) では、ベクトルネットワークアナライザ (VNA: Vector Network Analyzer) を使い、CPW 上に作製した磁性薄膜の  $S$  パラメータの外部印加磁界に対する依存性を測定することで $\alpha$ を導出する<sup>3-3)-3-7)</sup>。そのため、前述のマイクロ波キャビティを用いた FMR 測定と比べて試料サイズ及び周波数帯域の制限が少ない。しかし、磁化歳差運動の挙動を直接的に測定は出来ず、間接的に動特性を得る点は同様である。

これらの方法に対して、本研究で用いた超短パルス光を光源とした全光ポンプ・プローブ法では、光のスポット領域内、すなわち光の回折限界程度までの

局所領域におけるマイクロな磁化のダイナミクスを、実時間領域で直接的に計測することができるという利点を有する。また、前述の FMR 測定法ではマイクロ波磁界により磁化歳差運動を強制的に励起・維持し続け測定を行うが、ポンプ・プローブ法による測定ではポンプ光 (励起光) の照射により励起された磁化歳差運動の緩和過程を測定する点が異なる。

本章では、まず測定対象である磁化の歳差運動とクリティカルダンピング (臨界制動) 条件について述べる。そして、超短パルス光を用いた全光ポンプ・プローブ法による磁化ダイナミクスの計測法について述べ、構築した測定システムにおける垂直磁化 GdFeCo 薄膜の磁化歳差運動測定結果の典型例を示す。

## 3.2. 磁化歳差運動とクリティカルダンピング

本研究は高速磁化制御を応用上の目的としているが、近年では、スピン注入磁化反転 (Spin Transfer Torque Magnetization Switching)<sup>3-10)</sup>を記録原理に用いた磁気抵抗ランダムアクセスメモリ (MRAM: Magnetoresistive Random Access Memory) やスピントルク発振器 (STO: Spin Torque Oscillator) など、磁化の有する角運動量を積極的に利用したデバイスの研究が活発に行われており、種々の磁性材料における磁化動特性の測定・評価と積極的制御手法の確立への強い要求があることは、序論において述べた通りである。本節では、現行の磁気記録原理である外部磁界印加による磁化反転の過程と磁化動特性の対応について述べる。

磁化反転現象の基本特性を理解する上で最も簡単なモデルは、磁性層の磁化が一様で大きさの変わらない磁化ベクトル  $\mathbf{M}$  で表されると仮定する単磁区モデルである。このとき、磁化の歳差運動は模式的に、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式<sup>3-8), 3-9)</sup>により表すことが出来る。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \lambda\mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) \quad (3.1)$$

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M}\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad (3.2)$$

上の式 (3.1) を Landau-Lifshitz (LL) 方程式<sup>3-8)</sup>, 下の式 (3.2) を Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式<sup>3-9)</sup>という。両式はともに磁化の歳差運動を表した式であり,  $\mathbf{M}$  は原子磁気モーメント,  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  は実効磁界 (原子磁気モーメントに加わる磁界),  $\gamma$  は磁気回転比,  $\lambda$  及び  $\alpha$  は損失定数である。 $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  は  $\mathbf{M}$  に与えられるエネルギーで表されるため, 交換エネルギー, 一軸磁気異方性エネルギー, 外部磁界によるエネルギーを考え, 磁気エネルギー密度を  $\varepsilon$  とすると, 次式のようになる。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\frac{\delta\varepsilon}{\delta\mathbf{M}} \quad (3.3)$$

$$\varepsilon = A(\nabla\mathbf{M})^2 + K_u(1 - M_z^2) - H_{\text{ext}} \cdot \mathbf{M} - \frac{1}{2}H_D \cdot \mathbf{M} \quad (3.4)$$

$A$  は交換定数,  $K_u$  は一軸磁気異方性定数,  $H_{\text{ext}}$  は外部磁界,  $H_D$  は静磁界である。

(3.1) 式に示した LL 方程式及び (3.2) 式に示した LLG 方程式において, 右辺の第1項は歳差運動項, 第2項は減衰項である。第1項の歳差運動項は, 磁界  $\mathbf{H}$  によって原子磁気モーメント  $\mathbf{M}$  が磁界  $\mathbf{H}$  の周りを一定の角速度で回転運動することを示している。また第2項の減衰項は, 回転運動がエネルギーの損失によって減衰され, 最終的に磁界  $\mathbf{H}$  の方向を向くことを示している。(3.1) 式に示した LL 方程式では減衰項が歳差運動項と比べ十分に小さいという仮定がなされており, 減衰が時間に依存しないと見なせる場合にのみ適用可能である。しかし, 磁化ベクトルは時間とともに変化するため, 減衰運動も時間に対し依存性を有する。Gilbert は, 減衰項を磁化の時間微分に比例する項として置き換えている。これが(3.2) 式に示した LLG 方程式である。図 3-1 に, LLG 方程式における  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  と  $\mathbf{M}$  の関係を示す。

しかし, 上述の LLG 方程式は磁化動特性の詳細を含んでいない, 現象論的表



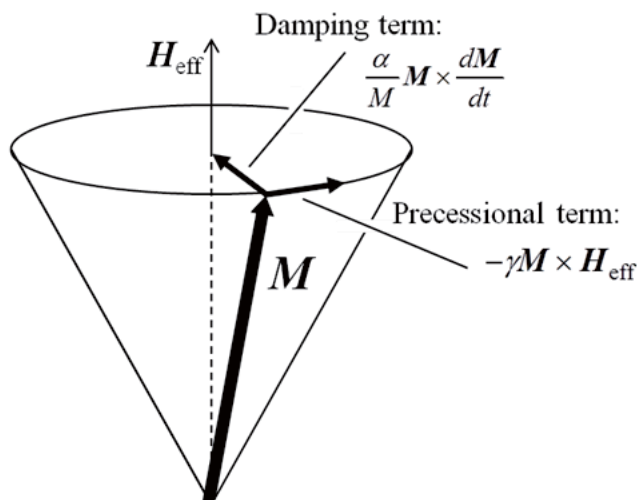


図 3-1 LLG 方程式における実効磁界  $H$  と磁気モーメント  $M$  の関係

式である。このモデルは磁性に寄与する電子を伝導電子から独立したものとして扱っているが、各種エネルギー損失（フォノン、伝導電子、スピン波、不純物等）の詳細は明確化されていない。磁気デバイスの磁化応答を記述する理論的表現式及びそのマイクロマグネティクスモデルへの拡張は未だ明らかにはなっておらず、電子構造、磁気構造、損失メカニズム、そして磁気システムの詳細な理解が望まれている。

印加磁界が比較的緩やかに変化する場合、減衰項のみで磁化の動的応答を記述することができる。このような準静的条件下では、磁化は Stoner-Wohlfarth 回転モデルに従い、エネルギーが最小となるよう軌跡を描く。そして、磁化は常に実効磁界の方向を向く。準静的条件となるための条件として、エネルギー緩和時間によって与えられる時間スケール下において緩やかに印加磁界が変化することが挙げられる。一方、外部印加磁界がエネルギー緩和時間よりも短時間で変化する場合、磁化は LLG 方程式の歳差運動項に従って、エネルギーが消費されるより早く、広い範囲において歳差運動を行う。この場合、最終的に低エネルギー状態に到達するよりも前に、何度も駆動する軌跡を描く。従って、磁

化ダイナミクスの計測を行うことにより、磁化の遅延特性より磁化反転速度の決定要因となる歳差運動周波数  $f$  と実効的減衰定数  $\alpha$  を算出することが出来る。

磁化歳差運動を示す LLG 方程式において上述の Gilbert ダンピング定数  $\alpha$  は

$$\alpha = \frac{1}{\tau\omega_0} = \frac{1}{\tau} \frac{1}{\gamma H_{\text{eff}}} \quad (3.5)$$

と表される。 $\tau$  は磁化  $M$  の向きの変化の緩和時間を示しており、磁化反転における時定数となる。また、 $\omega_0$  は歳差運動の角周波数 ( $= 2\pi f$ ) である。これより、Landau-Lifshitz の式 (3.1) を整理すると、下記ブロッホの式の形となる。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \frac{1}{\tau} M \quad (3.6)$$

ここで、LLG 方程式を直角座標系で表すと、

$$\frac{dM_x}{dt} = -\gamma M_y H_z + \frac{\alpha}{M} \left( M_y \frac{dM_z}{dt} - M_z \frac{dM_y}{dt} \right) \quad (3.7)$$

$$\frac{dM_y}{dt} = -\gamma M_x H_z + \frac{\alpha}{M} \left( M_z \frac{dM_x}{dt} - M_x \frac{dM_z}{dt} \right) \quad (3.8)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = 0 + \frac{\alpha}{M} \left( M_x \frac{dM_y}{dt} - M_y \frac{dM_x}{dt} \right) \quad (3.9)$$

となる。これらの解  $M_x, M_y$  を

$$M_x = m_x = m_0 e^{-t/\tau} \cos \omega_0 t \quad (3.10)$$

$$M_y = m_y = m_0 e^{-t/\tau} \sin \omega_0 t \quad (3.11)$$

とおくと、 $M^2 = M_x^2 + M_y^2 + M_z^2$  であるため、解  $M_z$  は

$$M_z = M \left[ 1 - \left( \frac{m_0}{M} \right)^2 e^{-2t/\tau} \right]^{1/2} \quad (3.12)$$

となる。このことから、時間がたつと  $M_z$  が増加して最終的には  $M = M_z$  となる。すなわち磁化  $M$  が  $H_{\text{eff}}$  方向を向くことがわかる。 $M_x, M_y$  の解とその微分を  $\dot{M}_z$  の式へ入れると、

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{\alpha}{M} m_0^2 \omega_0 e^{-2t/\tau} \quad (3.13)$$

となる。一方、 $M_z$ を微分すると、

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{\frac{1}{\tau} m_0^2 e^{-2t/\tau}}{M \left[ 1 - \left( \frac{m_0}{M} \right)^2 e^{-2t/\tau} \right]^{1/2}} \quad (3.14)$$

を得ることができる。両式が等しいとき、以下のような関係が得られる。

$$\alpha \tau \omega_0 = \frac{1}{\left[ 1 - \left( \frac{m_0}{M} \right)^2 e^{-2t/\tau} \right]^{1/2}} \quad (3.15)$$

$(m_0/M)^2 \ll 1$  とすると、緩和時間 $\tau$ は

$$\tau = \frac{1 + \alpha^2}{\alpha} \cdot \frac{1}{\omega_0} \quad (3.16)$$

と近似することが出来る。以上のように導出した緩和時間 $\tau$ の Gilbert ダンピング定数 $\alpha$ に対する変化は下記図 3-2 のようになる。

ここで、歳差運動を伴った磁化反転過程の $\alpha$ に対する依存性を図 3-3 に示す。これは、LLG 方程式に基づき、一斉磁化回転のもと、垂直磁化薄膜の磁化反転

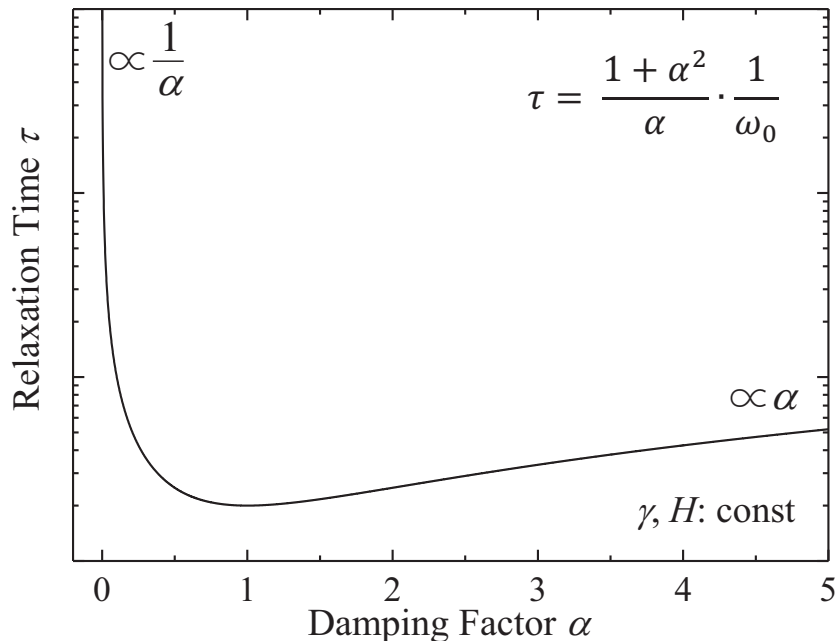


図 3-2 緩和時間 $\tau$ と Gilbert ダンピング定数 $\alpha$ の関係

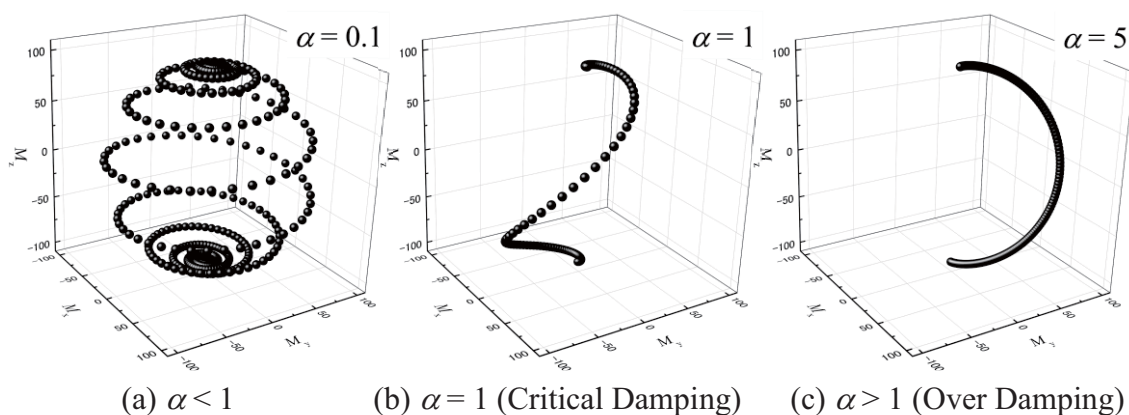


図 3-3 歳差運動を伴う磁化反転過程のダンピング定数 $\alpha$ 依存性

過程をシミュレーション計算した結果である。 $\alpha$ が1よりも小さいと、損失が小さいために図 3-3 (a) のように角周波数 $\omega_0$ で磁化  $\mathbf{M}$  が  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  の周りを回転する。図 3-2 からわかるように緩和時間 $\tau$ は  $1 / \alpha$  に比例と近似でき、 $\alpha$ が小さいほど $\tau$ も大きくなる。一方、 $\alpha$ が1よりも大きいときは、損失が大きいため図 3-3 (c)のように歳差運動せず磁化反転を行う。しかし図 3-2 からわかるように、 $\tau$ は $\alpha$ に比例と近似できるため、 $\alpha$ が大きいほど $\tau$ も大きくなる (過制動)。そこで、 $\alpha$ を制御することで図 3-3 (b) に示す、 $\tau$ が最短となるクリティカルダンピング (臨界制動) 条件 $\alpha=1$ に近づけることが、磁化反転の高速化には求められる。

### 3.3. ポンプ・プローブ法による磁化歳差運動の計測法

本節では、超短パルス光を光源に用いたポンプ・プローブ法による、磁化ダイナミクスの計測法について述べる。本手法はストロボスコピック計測の一種であり、極短時間の磁化状態に起因した磁気光学効果 (反射光の Kerr 効果もしくは透過光の Faraday 効果) の回転角を信号として検出するものである。本研究で構築し計測に用いたシステムは、歳差運動を励起するポンプと測定を行うプローブの双方にパルスレーザー光源を用いた全光型のポンプ・プローブ測定シ

システムである。電氣的な遅延の生成によりパルス磁界を印加して歳差運動を引き起こす手法と比較し、ポンプ光とプローブ光の試料表面への到達遅延時間を光路差によって高い分解能で制御可能であるため、高い時間分解能で計測可能という特徴を有する。そのため、実時間領域で数 GHz～数 10 GHz オーダーの磁化歳差運動を計測可能となる。

ストロボスコピック計測とは、ある周期的に高速動作する対象と同じ周期で発光する光源により照らすことで、照らされた対象をあたかも停止しているかのように観測する手法である。高速な現象である磁化歳差運動の計測に応用するためには、現象の励起と測定を同期させ、かつ同じ現象を繰り返し引き起こす必要がある。すなわち、本測定法では、測定周期と同期した初期化プロセスを導入しない限り、不可逆応答である磁化反転の過程は測定することができない。励起に用いるポンプ光と測定に用いるプローブ光は同一のパルス光源を分離して用いることで、周期を同期させて測定に用いた。測定対象とする磁性体の種類及び外部より印加する磁界の大きさにもよるが、磁化歳差運動は数 GHz～数 10 GHz オーダーの周波数であり（歳差運動周波数  $f$  は実効磁場  $H_{\text{eff}}$  と磁気回転比  $\gamma$  の積に比例）、周期にするとサブ ns～数 10 ps のオーダーとなる。この軌跡を観察するためには、発光時間が上記周期よりも十分短いパルス光源が必要となる。また、前節でも述べたように、歳差運動を励起するためには、その周期よりも短い時間スケールでポンプ光照射により実効磁界を変化させ、磁化に対しトルクを与える必要がある。上記理由のため、本研究で構築し実験に用いた磁化ダイナミクス計測システムの光源には、パルス幅約 90 fs (半値全幅) のモード同期式 Ti: Sapphire パルスレーザーを用いた。本測定システムにおける磁化歳差運動の励起原理の詳細については後述する。

上記検討のもと本研究では、ストロボスコピック計測により磁化ダイナミク

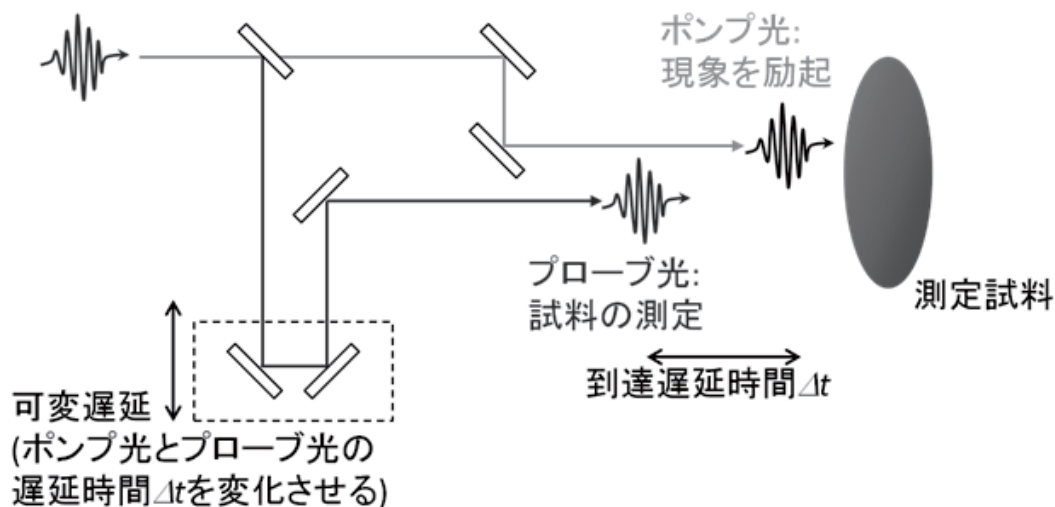


図 3-4 全光ポンプ・プローブ法の原理図

スを実時間領域で計測するため、全光型のポンプ・プローブ法による磁化歳差運動の励起・計測システムを構築した。これは図 3-4 のように、ポンプ光 (励起光) とプローブ光 (測定光) の試料表面への到達遅延時間を光路差の制御により変化させ、各遅延時間における磁気光学効果をプローブ光により繰り返し測定するシステムである。Spectra Physics 社製 Tsunami フェムト秒モード同期式 Ti: Sapphire パルスレーザーを種光とし、同じく Spectra Physics 社製の Spitfire Pro 光再生増幅器 (Regenerative Amplifier) にて増幅を行い、光源として用いた。光源の中心波長は 800 nm, パルス幅は約 90 fs (半値全幅), 繰り返し周波数 1 kHz である。出射したパルス光はビームスプリッターによりポンプ光とプローブ光に分離して用いている。そして分離後のポンプ光へ光学遅延装置を挿入することで、試料表面への到達時間を変化させている。光学遅延装置は、0.5  $\mu\text{m}$  単位でステージ位置の制御が可能な Newport 社製 M-ILS250PP 直進ステージ上に、リトロリフレクターを設置して用いた。光学遅延装置の最小制御分解能  $0.5 \mu\text{m} \times 2$  (往復)  $\div$  光速  $c$  ( $\div 3 \times 10^8 \text{ m/s}$ ) より、最小時間分解能約 3.3 fs でポンプ光とプローブ光の測定試料表面への到達遅延時間を制御可能であり、数 GHz $\sim$ 数 10 GHz

オーダーの磁化歳差運動を測定するには十分な時間分解能といえる。光学遅延装置を通過したポンプ光を試料表面へ照射することで、試料表面を極短時間で“加熱”する。この時、磁化及び磁気異方性の“温度”特性に起因した急峻な変化によって、磁化歳差運動が励起される。超短パルス光照射による極短時間加熱過程の詳細については、第5章にて後述する。そして、加熱への寄与が無視できる程度に強度を落としたプローブ光を用い、磁気光学効果 (Kerr 効果もしくは Faraday 効果) によって磁化  $M$  の変化を測定する。ポンプ光照射後にプローブ光により測定するまでの時間 (遅延時間  $\Delta t$ ) を変化させて繰り返し測定することで、極短時間現象である磁化歳差運動を実時間領域で計測することが可能となる。図 3-5 に、Faraday 配置における全光ポンプ・プローブ計測システムの概略図を示す。なお本計測システムは、BBO 結晶や光パラメトリック増幅器 (OPA: Optical Parametric Amplifier) を組み合わせることで、プローブ光もしくはポンプ光の中心波長を 240 nm~2.6  $\mu\text{m}$  の範囲で変換することが可能である。光

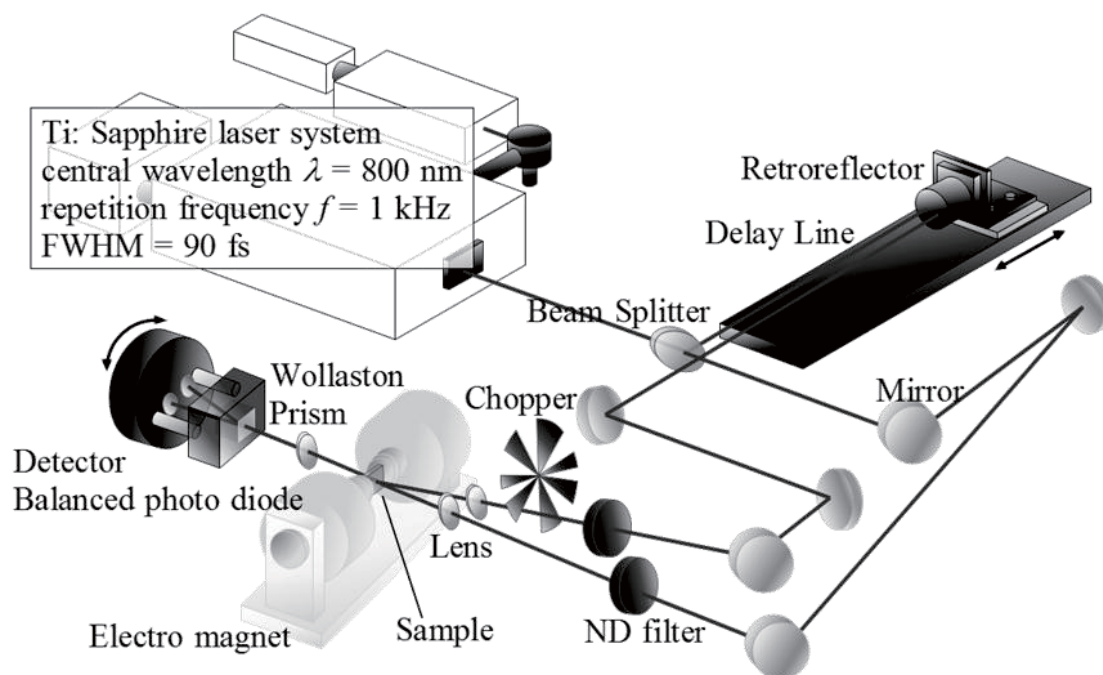


図 3-5 ポンプ・プローブ法による磁化歳差運動計測システムの概略図 (Faraday 配置)

パラメトリック増幅器には Light Conversion 社製 TOPAS-C を用いた。

測定試料表面におけるポンプ光，プローブ光のスポットの関係及び外部印加磁場は，図 3-6 に示すようになっている。上述のように，本計測システムはプローブ光のスポット領域内の磁化に対応した信号を磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果により測定するシステムである。そのため，プローブ光のスポット内において複数のモードの歳差運動が生じている場合には，各位置におけるプローブ光のスポット内強度分布と磁化状態からなる信号を積算した信号となる。光源に用いたパルスレーザーの空間強度分布は図 3-7，図 3-8 に示すようにほぼガウシアン状である。そのため，プローブ光により測定するスポット範囲の磁化状態を揃え一様なモードでの歳差運動に起因した信号を測定するためには，プローブ光に対しポンプ光のスポットサイズを十分大きく取り，ポンプ光の強度勾配が小さい範囲での測定を行う必要がある。

本磁化ダイナミクス測定システムを用いた，垂直磁化薄膜における磁化歳差

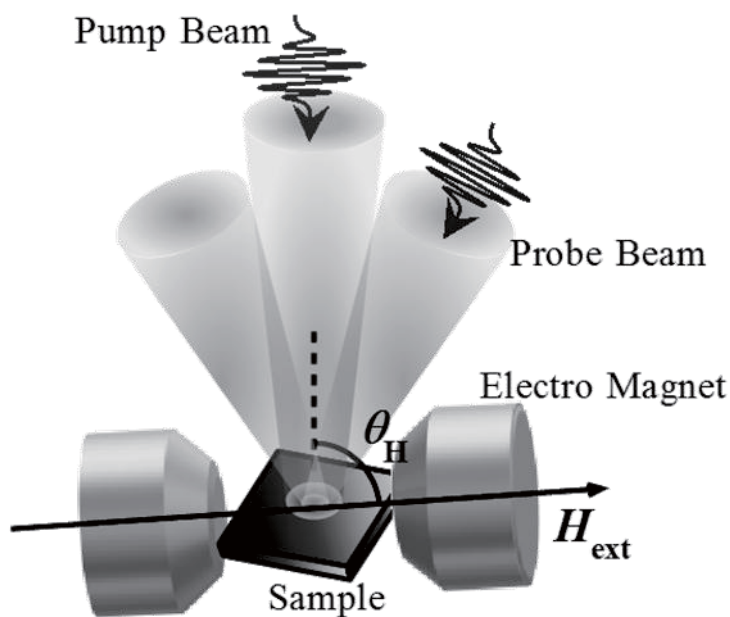


図 3-6 Kerr 配置における試料表面におけるポンプ光・プローブ光のスポットと外部印加磁場の関係



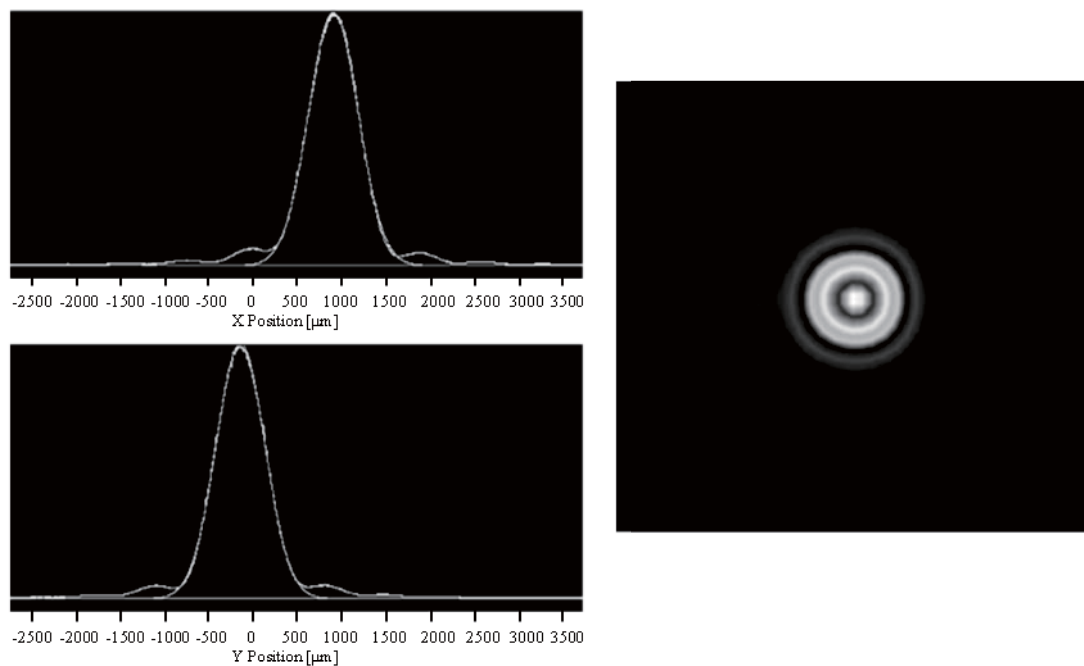


図 3-7 再生増幅器出射レーザーパルスの空間強度分布 (2次元)

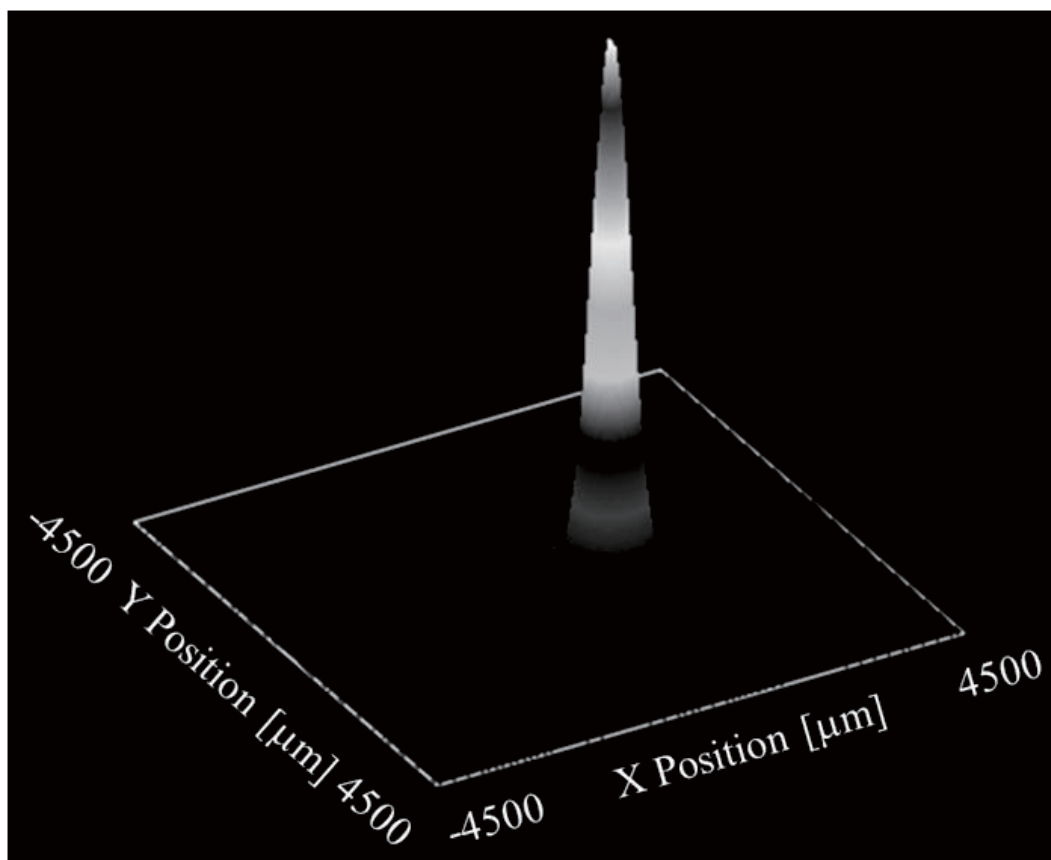


図 3-8 再生増幅器出射レーザーパルスの空間強度分布 (3次元)

運動の励起原理の図を図 3-9 に示す<sup>3-11), 3-12)</sup>。図中の  $H_a$  は異方性磁界,  $H_d$  は自己減磁界 (反磁界),  $H_{ext}$  は外部印加磁界であり, 実効磁界  $H_{eff}$  はそれらのベクトル和である。外部磁界  $H_{ext}$  を膜面法線より傾けて印加することで, 磁化  $M$  は磁化容易軸から実効磁界  $H_{eff}$  の方向へ傾きが生じる。超短パルスポンプ光の照射により極短時間で試料が“加熱”されると, 異方性磁界  $H_a$  は減じ, 磁化  $M$  の大きさの変化に伴い自己減磁界  $H_d$  も変化する。そのため実効磁界  $H_{eff}$  の大きさ及び方向は  $\sim ps$  オーダーの時間領域で急峻に変化し( $H'_{eff}$ )<sup>3-13), 3-14)</sup>, 磁化  $M'$  は  $H'_{eff}$  の方向へ向かい歳差運動を伴って変化を開始する。なお, この歳差運動の過程には, 熱拡散による磁化  $M'$ , 実効磁界  $H'_{eff}$  の回復が重畳する。

上記全光ポンプ・プローブ法による磁化歳差運動の励起・測定法では, プローブ光の磁気光学効果には, 反射光では極 Kerr 効果, 透過光では Faraday 効果が主として現れる。そのため, 計測するプローブ光の磁気旋光角 (Kerr 回転角  $\Delta\theta_k$ , Faraday 回転角  $\Delta\theta_f$ ) は, 磁化の膜面垂直方向の射影成分と概ね一致する。

試料を反射もしくは透過したプローブ光の  $\Delta\theta_k$  もしくは  $\Delta\theta_f$  による偏光面の変化は, Wollaston Prism にて偏光面の直交する成分に分離し, 差動検出ディテクタ

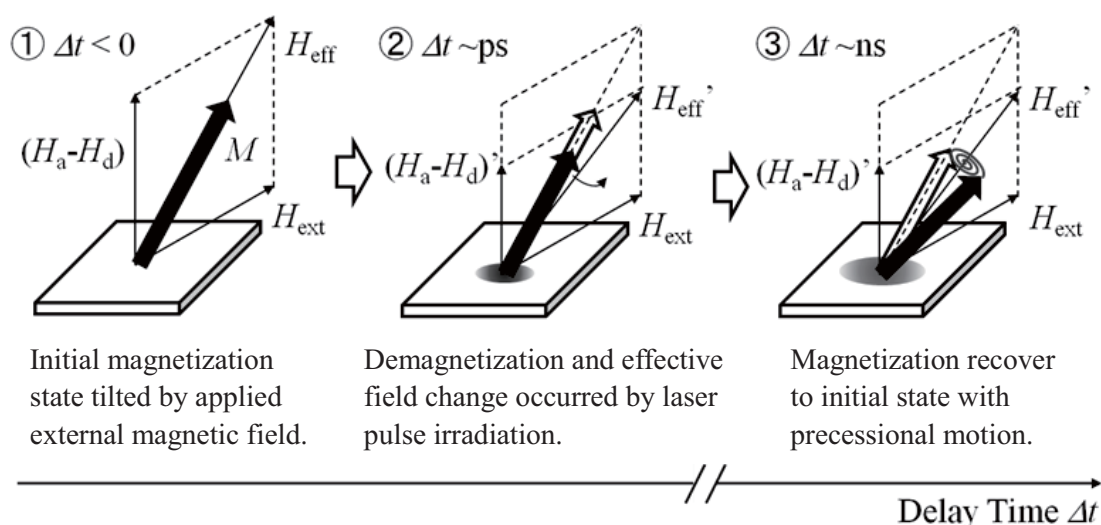


図 3-9 全光ポンプ・プローブ法による磁化歳差運動の励起過程

にて検出を行った。2つのフォトダイオードへの入射光強度が概ね均衡しているとき、差動検出した信号出力は、反射光もしくは透過光の強度を  $I$ 、旋光角を  $\theta$ 、楕円率を  $\eta$  とすると

$$2I\sqrt{\theta^2 + \eta^2} \tag{3.17}$$

に比例する。また、2つのフォトダイオード信号の和は反射光もしくは透過光の強度  $I$  に比例する。この差動検出ディテクタによる検出信号に対し Stanford Research 社製 SR250 ゲート式積分器を用い、レーザーパルスに対応したゲート範囲の差動信号を次のパルス光が入射されるまで出力しつづけることで、パルス光入射による応答の間のノイズを除去し S/N の向上を図っている。ポンプ光はオプティカルチョッパーを用いて繰り返し周波数 500 Hz に変調し、プローブ光は光源の繰り返し周波数 1 kHz のまま試料へ照射することで、プローブ光の偏光面回転に対応する差動検出信号の、500 Hz 周期で現れるポンプ光照射の有無による差をロックインアンプにより感度よく検出することが可能となる。本測定システムにおける検出信号の処理について、ブロック図を図 3-10 に示す。

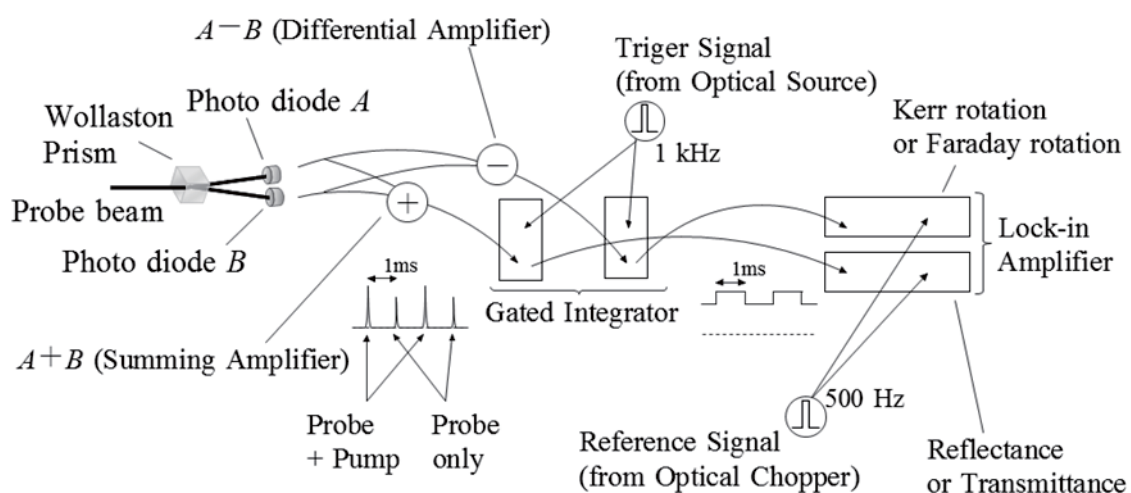


図 3-10 磁化ダイナミクス計測システムにおける差動検出信号の処理のブロック図

本システムに用いた Ti: Sapphire パルスレーザー光源の出射光強度及びパルス幅を安定化するため、システムを設置したクリーンブース内は、測定中  $24 \pm 1^\circ\text{C}$  の温度範囲で制御を行った。種光として用いた Ti: Sapphire フェムト秒パルスレーザー (Spectra Physics 社製 Tsunami) 出射光の分光計 (Ocean Optics 社製 USB2000) で測定したスペクトラムを図 3-11 に、オートコリレーター (Newport 社製 PSCOUT LR) にて測定したパルス波形を図 3-12 にそれぞれ示す。また、再生増幅器 (Spectra Physics 社製 Spitfire Pro) 出射光のスペクトラムを図 3-13 に、パルス波形を図 3-14 にそれぞれ示す。オートコリレーターによる計測波形は、オートコリレーターの性質により実際のパルス波形と異なり、パルス幅 (半値全幅, FWHM: Full Width at Half Maximum) を求めるためには、計測した半値全幅に対しデコンボリューション値 (deconvolution factor) を乗算して校正する必要がある。なお、種光と再生増幅器出射光は繰り返し周期が異なるため (それぞれ 80 MHz, 1 kHz) それぞれに対応するディテクタユニットに交換しており、種光の波形測定用セットアップにおけるオートコリレーターのデコンボリューション値は 0.9, 再生増幅器出射光の波形測定用セットアップにおけるデコンボリューション値は 0.7 である。図 3-12 の種光及び図 3-14 の再生増幅器出射光の測定波形半値全幅に上記デコンボリューション値を乗算して校正すると、パルス幅 (半値全幅) はそれぞれ 86.1 fs, 89.6 fs となる。

超短パルス光を用いる場合、パルス光のもつ波長 (周波数) 分散により、伝播媒質中でパルス光内の異なるスペクトル成分に周波数依存の遅延を生じさせる。すなわち、光学素子を通過することでパルス幅が広がる点に注意が必要である。パルス幅の広がり、下記の式を用いて計算を行うことが出来る<sup>3-15)</sup>。

$$\Delta t_{\text{out}} = \frac{\sqrt{\Delta t_{\text{out}}^4 + 16(\ln 2)^2 (GVD \cdot t)^2}}{\Delta t_{\text{in}}} \quad (3.18)$$

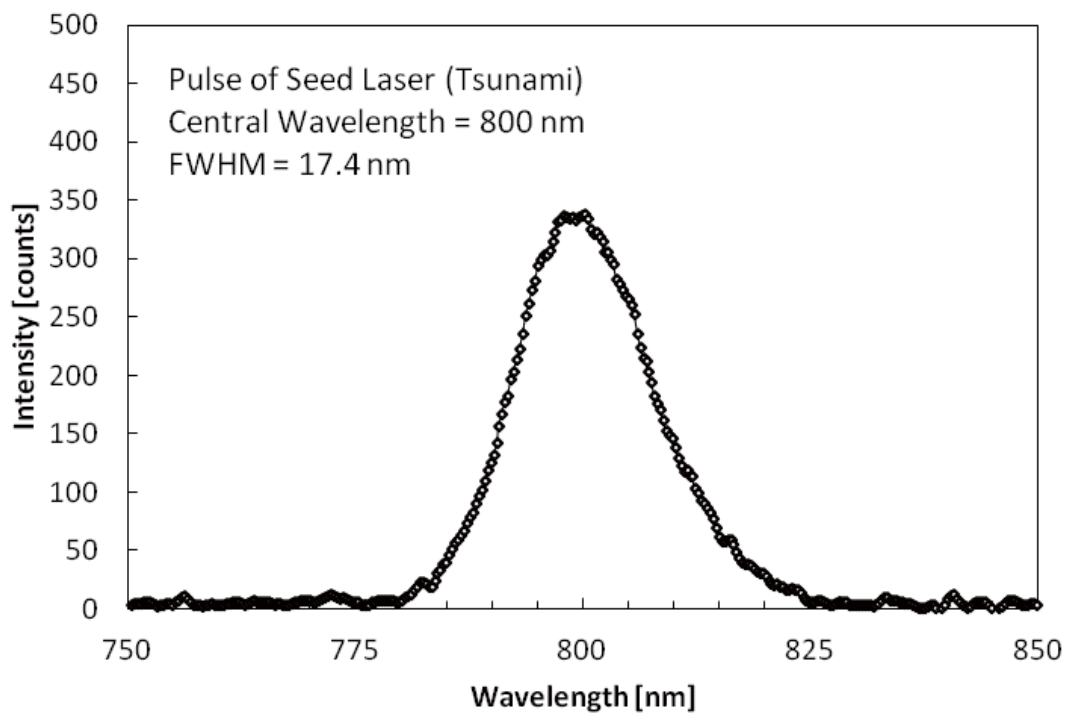


図 3-11 種光 (Spectra Physics 社 Tsunami) のスペクトル

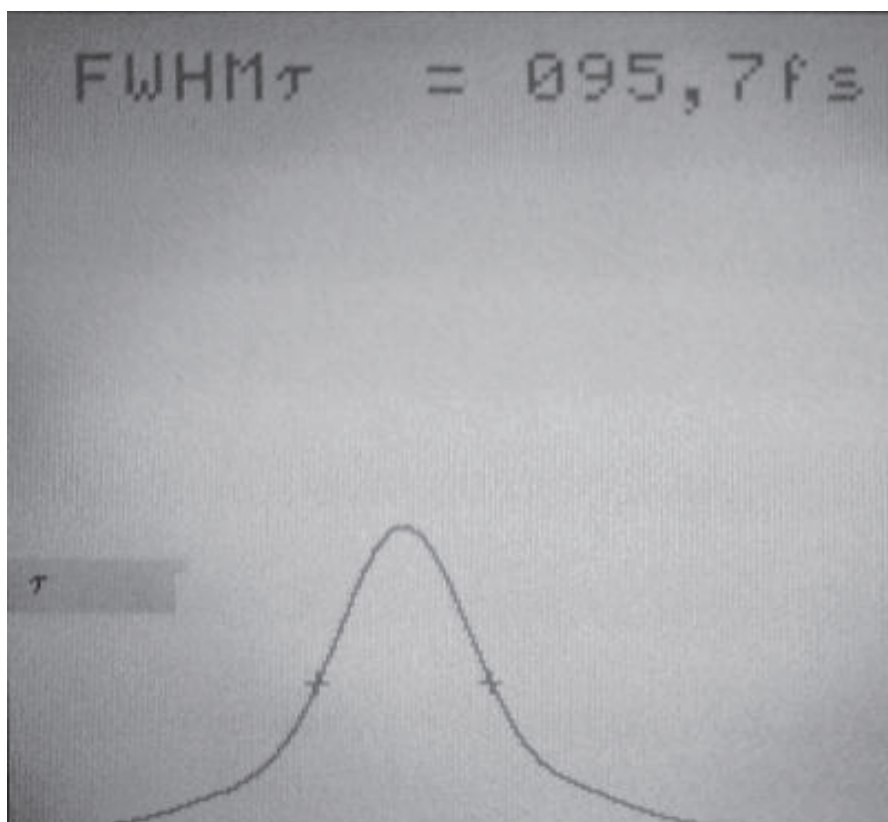


図 3-12 種光 (Spectra Physics 社 Tsunami) のパルス波形

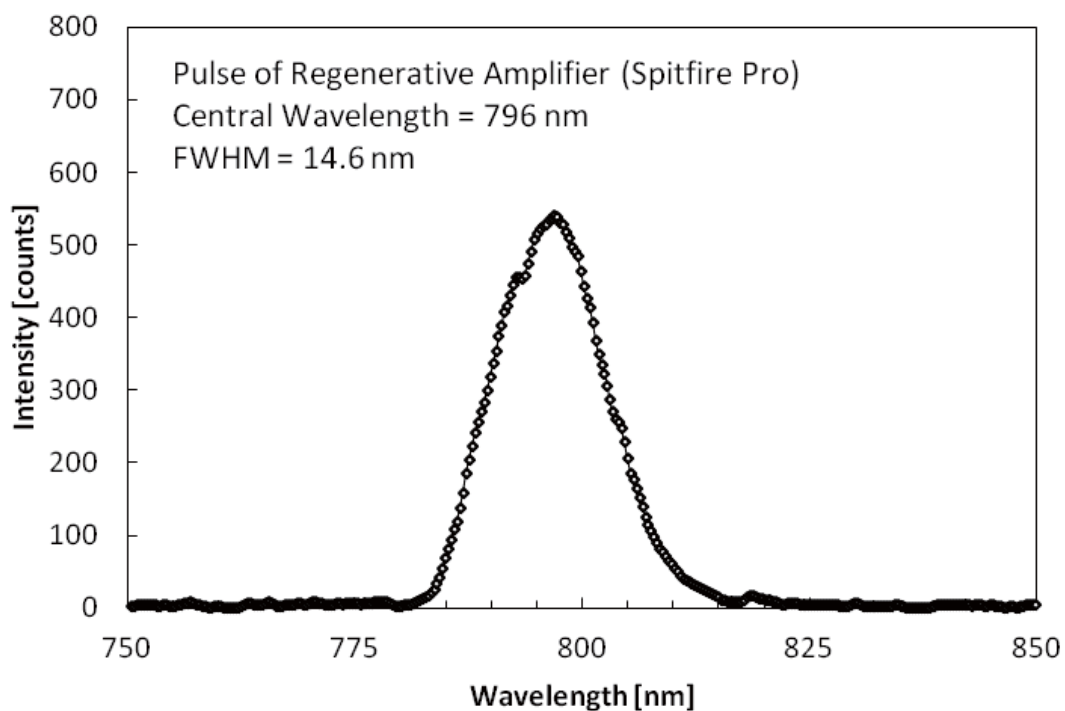


図 3-13 再生増幅器 (Spectra Physics 社 Spitfire Pro) のスペクトル

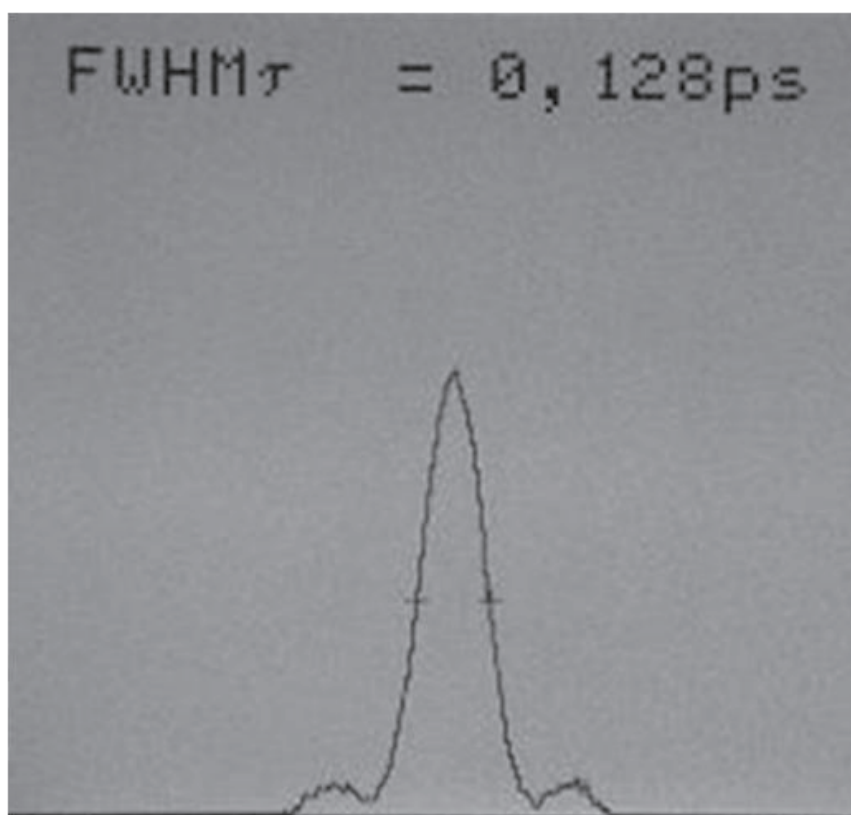


図 3-14 再生増幅器 (Spectra Physics 社 Spitfire Pro) のパルス波形

ここで、 $\Delta t_{in}$  及び  $\Delta t_{out}$  は入射及び出射パルス幅、GVD は群速度分散 (Group Velocity Dispersion) [ $\text{fs}^2 / \text{mm}$ ],  $t$  は通過する媒質の厚み [ $\text{mm}$ ] である。例として、中心波長 800 nm 及び 400 nm の超短パルス光 (パルス幅 200 fs 以下) が代表的光学素子用材質である BK7 ガラス及びフューズドシリカ (熔融石英) の中を 5 mm 伝播する際に生じるパルスの広がりを計算した結果を図 3-15 に示す。パルス幅を 100 fs 程度より短くした場合、出力のパルス幅の広がりが増大することが計算結果からわかる。このため、超短パルス光を光源に用いた光学系を構築する際には、波長分散特性の小さな光学素子を選定することが重要となる。

これら検討のもと構築を行った磁化ダイナミクス計測システムは、最小時間分解能 3.3 fs, 磁気光学 Kerr・Faraday 回転角の検出分解能 1 mdeg.以下, 反射率・透過率変化率の検出分解能 0.03 %以下の計測を実現している。

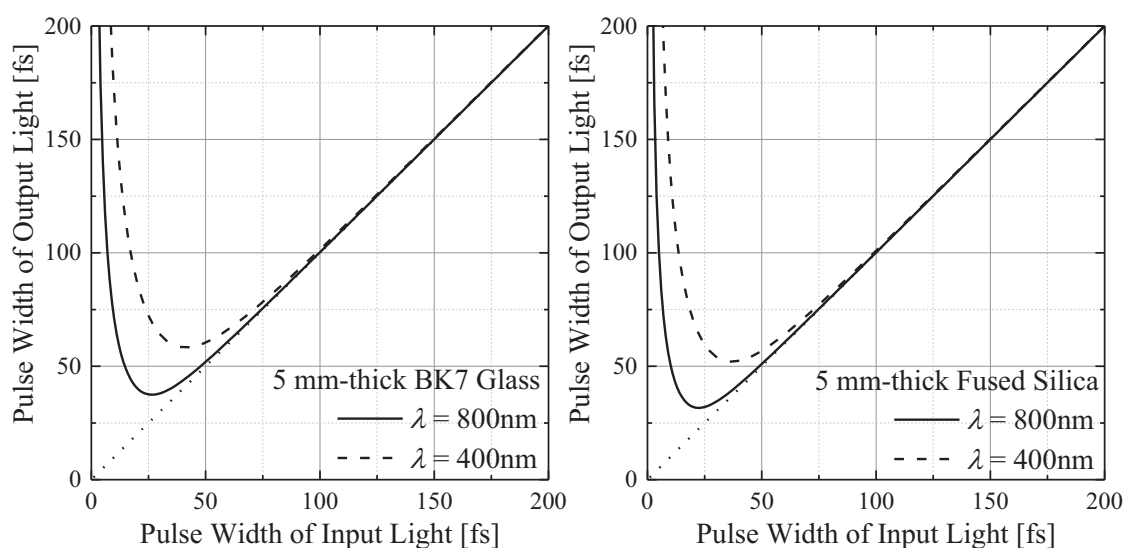


図 3-15 中心波長  $\lambda = 800 \text{ nm}$  及び  $400 \text{ nm}$  のフェムト秒オーダー超短パルス光が 5 mm 厚 BK7 ガラス及びフューズドシリカを伝播した際に生じるパルス幅の広がりの見積もり

### 3.4. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

#### 磁化ダイナミクスの計測

ここまで、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、垂直磁化薄膜の磁化歳差運動励起・計測法について述べた。本節では、上記測定システムを用いることで、フェリ磁性 GdFeCo 合金の垂直磁化薄膜において磁化ダイナミクスを測定出来ることを示す。

測定試料は、マグネトロンスパッタ法で作製した SiN (60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub.を用いた。本試料は、室温 (24°C) において遷移金属磁化  $M_{TM}$  が希土類磁化  $M_{RE}$  に対し優勢である。本試料に対し、中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅), 繰り返し周波数 1 kHz の超短パルス光源を用い、上記全光ポンプ・プローブ法により磁気光学 Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$  の時間発展を計測した。 $\Delta\theta_k$  を測定するプローブ光は BBO 結晶を用い中心波長 400 nm へ変換し、歳差運動を励起する高強度ポンプ光の差動検出ディテクタへの入射をフィルタリングして用いた。ポンプ光及びプローブ光の試料表面におけるスポット径は、それぞれ 300  $\mu\text{m}$ , 40  $\mu\text{m}$  となるようレンズにて集光し、照射を行った。ポンプ光の試料表面におけるエネルギー密度は 0.7  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ , プローブ光は 46  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$  とした。また、外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は膜面法線より 83°傾け 360 mT 印加している。上記条件における磁化ダイナミクスの測定結果を図 3-16 に示す。図の横軸はポンプ光の試料表面到達からの遅延時間  $\Delta t$ , 縦軸は試料を反射したプローブ光の磁気光学 Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$  を示している。主に遷移金属磁化  $M_{TM}$  に対応した  $\Delta\theta_k^{3-16), 3-17)}$  はポンプ光照射による減磁に伴い急峻に変化し、その後歳差運動による減衰振動成分を伴い収束していることが確認できる。

無限平面の垂直磁化薄膜を仮定した場合、磁化歳差運動の周波数  $f$  は次の式



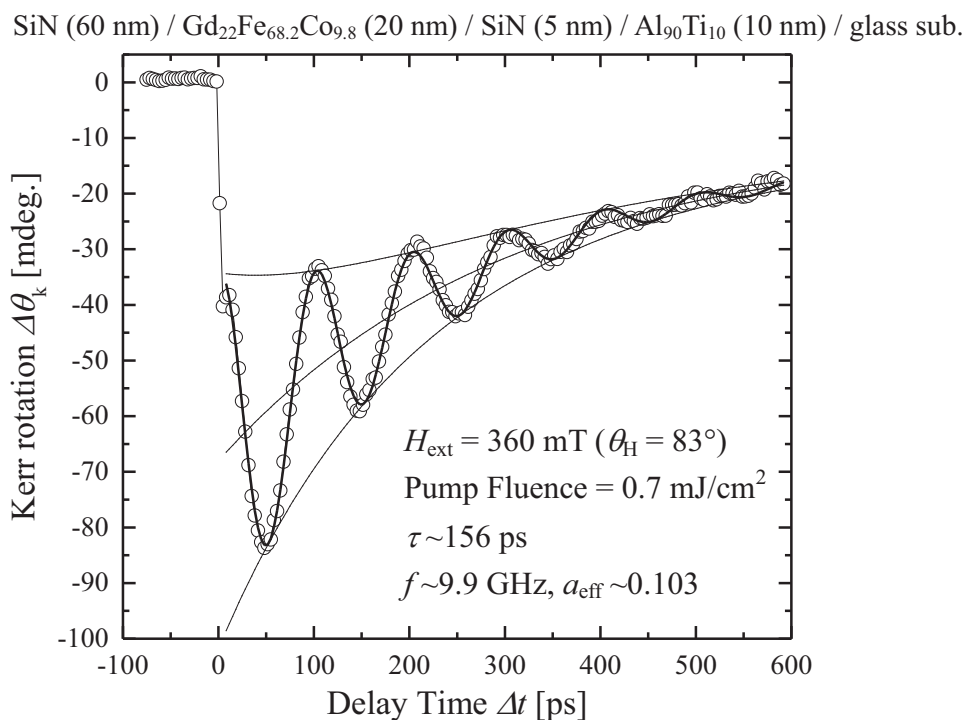


図 3-16 Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (20 nm) 試料における磁化ダイナミクスの全光ポンプ・プローブ法による計測結果

(3.19) のように導くことが出来る<sup>3-18), 3-19)</sup>。

$$f = \gamma_{\text{eff}}/2\pi(1 + \alpha_{\text{eff}}^2) \cdot \sqrt{(H_{\text{ext}} \cos \theta + H_a - H_d)^2 + (H_{\text{ext}} \sin \theta)^2} \quad (3.19)$$

ここで、 $\theta$ は外部磁界が膜面法線方向となす角であり、異方性磁界  $H_a = 2K_u M_z / M_{\text{net}}^2$ 、自己減磁界 (反磁界)  $H_d = 4\pi M_z$  となる ( $K_u$ : 一軸磁気異方性エネルギー、 $M_z$ : 正味磁化  $M_{\text{net}}$  の膜面法線方向成分)。上式から明らかなように、歳差運動周波数  $f$  は垂直磁化薄膜内の実効磁界に比例する。正確な  $f$  の検討を行うには実効磁界  $H_{\text{eff}}$  の時間変化を考慮する必要があるため、LLG 方程式を構成する相互に関係した微分方程式の行列式を解く必要があり複雑となる。しかし、 $\mathbf{M}$  が飽和するような大きな外部磁界印加下においては  $H_{\text{eff}}$  に占める  $H_{\text{ext}}$  の割合が大きく、ポンプ・プローブ法による歳差運動の励起では磁化反転の過程と異なり磁化方向の変化も小さい。そのため、歳差運動励起後の磁化の熱的变化が小さいとき、

歳差運動励起後の実効磁界  $H_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  は一定と近似できる。

そこで、ポンプ光照射による加熱・減磁後の熱拡散による熱的回復変化を緩和時間  $\tau_1$  の exponential と仮定し、下記の式を用いてフィッティングを行った。

$$y = A_0 + A_1 \exp(-\Delta t / \tau_1) + A_2 \exp(-\Delta t / \tau_2) \sin(\pi(\Delta t - t_c) / w) \quad (3.20)$$

上式の  $\tau_2$  が歳差運動の緩和時間  $\tau$ ,  $1 / 2w$  が歳差運動周波数  $f$  と対応する。図 3-16 中の補助線はフィッティング結果を表しており、歳差運動緩和時間  $\tau \sim 156$  ps, 歳差運動周波数  $f \sim 9.9$  GHz となった。LLG 方程式に基づき実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  を求めると  $\sim 0.103$  となる。このように GdFeCo 薄膜において、構築した測定システムにより磁化歳差運動の励起・測定が可能であることを示した。

### 3.5. まとめ

本章では、本研究において測定対象としている磁化の歳差運動について述べ、クリティカルダンピングの条件である Gilbert ダンピング定数  $\alpha = 1$  のときに磁化反転緩和時間が最短となることを示した。そして、本研究において構築を行い測定に用いた、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励起・測定原理と構築したシステムについて述べた。そして、上記システムを用い、第2章にて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。

## 参考文献

- 3-1) J. H. E. Griffiths: *Nature* **158**, 670 (1946).
- 3-2) B. Heinrich, K. B. Urquhart, A. S. Arrott, J. F. Cochran, K. Myrtle, and S. T. Purcell: *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1756 (1987).
- 3-3) G. Counil, J.-V. Kim, T. Devolder, C. Chappert, K. Shigeto, and Y. Otani: *J. Appl. Phys.* **95**, 5646 (2004).
- 3-4) S. S. Kalarickal, P. Krivosik, M. Wu, C. E. Patton, M. L. Schneider, P. Kabos, T. J. Silva, and J. P. Nibarger: *J. Appl. Phys.* **99**, 093909 (2006).
- 3-5) M. Toda, K. Saito, K. Ohta, H. Maekawa, M. Mizuguchi, M. Shiraishi, and Y. Suzuki: *J. Magn. Soc. Jpn.* **31**, 435 (2007).
- 3-6) Y. Endo, Y. Mitsuzuka, Y. Shimada, and M. Yamaguchi: *Abstract of ICM 2009*, 185 (2009).
- 3-7) 遠藤恭, 三束芳央, 大川耕平, 島田寛, 山口正洋: 信学技報 MR2010-49, 51 (2010).
- 3-8) L. D. Landau and E. M. Lifshitz: *Phys. Z. Sowjet.* **8**, 153 (1935).
- 3-9) T. L. Gilbert: *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1955).
- 3-10) J. C. Slonczewski: *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996).
- 3-11) C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Phys. Rev. B* **73**, 220402(R) (2006).
- 3-12) C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.* **98**, 207401 (2007).
- 3-13) M. van. Kampen, C. Jozsa, J. T. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W. J. M. de Jonge, and B. Koopmans: *Phys. Rev. Lett.* **88**, 227201 (2002).
- 3-14) M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot: *Phys.*

*Rev. Lett.* **94**, 237601 (2005).

3-15) Newport テクニカルノート 「分散が超短パルス光に及ぼす影響」

3-16) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (S1), 273 (1987).

3-17) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).

3-18) A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh, A. Kimel, A. Tsvetkov, H. Awano, N. Ohta, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *IEEE Trans. Magn.* **40**, 2543 (2004).

3-19) 塚本新, 中川活二, 伊藤彰義, A. Kirilyuk, Th. Rasing: 日本応用磁気学会誌 **28**, 318 (2004).

## 第4章 フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

### 磁化動特性の温度・組成依存性

#### 4.1. はじめに

前章では、磁性薄膜の磁化歳差運動を実時間領域高分解能計測するための、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計測システムについて、磁化歳差運動の励起・測定原理及び構築したシステムによる典型的測定結果を示した。

本研究で対象としたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜は、第2章で述べたように、副格子を構成する希土類及び遷移金属の磁化が反平行結合している。各副格子の  $g$  係数が異なる場合、副格子の角運動量が打ち消し合い正味の角運動量  $A_{\text{net}}$  が消失する角運動量補償現象が、磁化補償現象と異なる温度もしくは組成によって生じると期待される。つまり、角運動量補償温度もしくは組成において正味磁化  $M_{\text{net}}$  を有しつつ  $A_{\text{net}}$  が消失する状態が生じると考えられる。これにより外部磁界  $H_{\text{ext}}$  による  $M_{\text{net}}$  へのトルクが生じ、角運動量補償温度もしくは組成の近傍においても歳差運動が励起可能であるだけでなく、磁化歳差運動を記述した Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式における Gilbert ダンピング定数  $\alpha$  及び歳差運動周波数  $f$  の発散的増大が期待される。

本章ではまず、Gilbert ダンピング定数  $\alpha$  及び上記歳差運動周波数  $f$  の増大について、マクロスピンモデルにおける理論計算によって定性的温度・組成依存性の検討を行う。そして前章で述べた全光ポンプ・プローブ法により希土類 (RE) 遷移金属 (TM) アモルファス合金フェリ磁性体である GdFeCo 薄膜の磁化ダイナミクスを実時間計測し、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における  $\alpha$  及び  $f$  の温度・組成に対する依存性について理論及び実験の双方の観点で検討を行う。

## 4.2. RE-TM フェリ磁性体における

### 磁化動特性の定性的温度・組成依存性

本節では、希土類 (RE) 遷移金属 (TM) フェリ磁性体の磁化動特性について、マクロスピンモデルにおける定性的な組成及び温度依存性を検討する。RE 副格子の磁化  $M_{\text{RE}}$  と TM 副格子の磁化  $M_{\text{TM}}$ 、それぞれの LLG 方程式<sup>4-1), 4-2)</sup>は以下のように表すことができる。

$$\frac{d\mathbf{M}_{\text{RE}}}{dt} = -|\gamma_{\text{RE}}|\mathbf{M}_{\text{RE}} \times \mathbf{H}_{\text{RE}} + \frac{\alpha_{\text{RE}}}{M_{\text{RE}}}\mathbf{M}_{\text{RE}} \times \frac{d\mathbf{M}_{\text{RE}}}{dt} \quad (4.1)$$

$$\frac{d\mathbf{M}_{\text{TM}}}{dt} = -|\gamma_{\text{TM}}|\mathbf{M}_{\text{TM}} \times \mathbf{H}_{\text{TM}} + \frac{\alpha_{\text{TM}}}{M_{\text{TM}}}\mathbf{M}_{\text{TM}} \times \frac{d\mathbf{M}_{\text{TM}}}{dt} \quad (4.2)$$

ここで、 $\gamma_{\text{RE}}$ 、 $\gamma_{\text{TM}}$ はそれぞれ RE, TM 副格子磁化の磁気回転比、 $\alpha_{\text{RE}}$ 、 $\alpha_{\text{TM}}$ はそれぞれ RE, TM 副格子磁化の Gilbert ダンピング定数とする。また、 $H_{\text{RE}}$ 、 $H_{\text{TM}}$ はそれぞれ RE, TM 副格子磁化の受ける実効磁界を表す。なお、磁気回転比 $\gamma$ と  $g$  係数は下記式(4.3)の関係にある。

$$|\gamma_i| = g_i \frac{\mu_B}{\hbar} \quad (4.3)$$

$$(\hbar = h/2\pi, i = \text{RE, TM})$$

また、Gilbert ダンピング定数 $\alpha_i$ は、Landau-Lifshitz の減衰係数 $\lambda_i$ を用いると下記式(4.4)のように表される。

$$\alpha_i = \frac{\lambda_i}{|\gamma_i|M_i} \quad (4.4)$$

ここで、現実のフェリ磁性合金における副格子磁化間の交換結合エネルギーは有限であるが、大きな分子場により各副格子磁化  $M_{\text{RE}}$  と  $M_{\text{TM}}$  が完全に反平行結合していると仮定すると、上記式 (4.1), (4.2) の各副格子における LLG 方程式は、下記式 (4.5) のように1つの LLG 方程式として扱うことができる。

$$\frac{d\mathbf{M}_{\text{net}}}{dt} = -|\gamma_{\text{eff}}|\mathbf{M}_{\text{net}} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha_{\text{eff}}}{M_{\text{net}}}\mathbf{M}_{\text{net}} \times \frac{d\mathbf{M}_{\text{net}}}{dt} \quad (4.5)$$

$M_{\text{net}}$  は正味磁化，すなわち副格子磁化  $M_{\text{RE}}$  と  $M_{\text{TM}}$  の差分であり， $H_{\text{eff}}$  は  $M_{\text{net}}$  の受ける実効磁界である。このとき，上式中の実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は以下の式 (4.6) 及び (4.7) のように与えられる。

$$\gamma_{\text{eff}} = \frac{M_{\text{RE}} - M_{\text{TM}}}{\frac{M_{\text{RE}}}{|\gamma_{\text{RE}}|} - \frac{M_{\text{TM}}}{|\gamma_{\text{TM}}|}} = \frac{M_{\text{RE}} - M_{\text{TM}}}{\frac{M_{\text{RE}}}{g_{\text{RE}}} - \frac{M_{\text{TM}}}{g_{\text{TM}}}} \frac{\mu_{\text{B}}}{h/2\pi} = g_{\text{eff}} \frac{\mu_{\text{B}}}{h/2\pi} \quad (4.6)$$

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{\frac{\alpha_{\text{RE}}M_{\text{RE}}}{|\gamma_{\text{RE}}|} + \frac{\alpha_{\text{TM}}M_{\text{TM}}}{|\gamma_{\text{TM}}|}}{\frac{M_{\text{RE}}}{|\gamma_{\text{RE}}|} - \frac{M_{\text{TM}}}{|\gamma_{\text{TM}}|}} = \frac{\frac{\lambda_{\text{RE}}}{|\gamma_{\text{RE}}|^2} + \frac{\lambda_{\text{TM}}}{|\gamma_{\text{TM}}|^2}}{\frac{M_{\text{RE}}}{|\gamma_{\text{RE}}|} - \frac{M_{\text{TM}}}{|\gamma_{\text{TM}}|}} \quad (4.7)$$

式 (4.6) 中の  $g_{\text{eff}}$  は実効  $g$  係数である。正味磁化  $M_{\text{net}} \equiv M_{\text{RE}} - M_{\text{TM}}$ ，正味角運動量  $A_{\text{net}} \equiv M_{\text{RE}}/|\gamma_{\text{RE}}| - M_{\text{TM}}/|\gamma_{\text{TM}}|$  を用いて， $A_0 \equiv \lambda_{\text{RE}}/|\gamma_{\text{RE}}|^2 + \lambda_{\text{TM}}/|\gamma_{\text{TM}}|^2$  と定義すると，式 (4.6) 及び (4.7) に示したフェリ磁性合金の実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は，それぞれ以下のように表すことができる。

$$\gamma_{\text{eff}} = \frac{M_{\text{net}}}{A_{\text{net}}} \quad (4.8)$$

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{A_0}{A_{\text{net}}} \quad (4.9)$$

これより，正味磁化  $M_{\text{net}}$  と正味角運動量  $A_{\text{net}}$  を用いて，実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の組成依存性を計算することが可能となる。

ここで，ストーナー・ウォルフアース (Stoner-Wohlfarth) モデルに従う単磁区構造の一斉回転モデルを仮定すると，磁界の周りを歳差運動するときの角周波数  $\omega$  及び磁化が磁界方向に倒れる緩和時間 (時定数)  $\tau$  は，LLG 方程式より下記のように求めることができる。

$$\omega = \frac{\gamma_{\text{eff}} H_{\text{eff}}}{1 + \alpha_{\text{eff}}^2} \quad (4.10)$$

$$\tau = \frac{1}{\alpha_{\text{eff}} \omega} = \frac{1 + \alpha_{\text{eff}}^2}{\alpha_{\text{eff}}} \frac{1}{\gamma_{\text{eff}} H_{\text{eff}}} \quad (4.11)$$

なお, 実効磁界  $H_{\text{eff}}$  の方向を  $z$  方向と定義し, 方向が変化せず一定と仮定すると, 磁化の方向は下記のように極座標表示することが可能となる。

$$\phi = \omega t + \phi_0 \quad (4.12)$$

$$\theta = 2 \arctan \left[ \tan \frac{\theta_0}{2} \exp \left( -\frac{t}{\tau} \right) \right] \quad (4.13)$$

ここで,  $\phi_0$  及び  $\theta_0$  は  $t = 0$  における初期値である。これより, 角周波数  $\omega$  と緩和時間  $\tau$  を直接計測することで,

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{1}{\omega \tau} \quad (4.14)$$

より実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  が求まる。さらに,

$$\gamma_{\text{eff}} = \omega (1 + \alpha_{\text{eff}}^2) \frac{1}{H_{\text{eff}}} = \omega \left( \frac{1}{\omega^2 \tau^2} \right) \frac{1}{H_{\text{eff}}} \quad (4.15)$$

より実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  が求まる。ここで, 式 (4.8) 及び (4.9) で示した

$\gamma_{\text{eff}} = \frac{M_{\text{net}}}{A_{\text{net}}}$ ,  $\alpha_{\text{eff}} = \frac{A_0}{A_{\text{net}}}$  を角周波数  $\omega$ , 緩和時間  $\tau$  の式(4.10), (4.11)に代入する

と, 下記のようになる。

$$\omega = \frac{1}{1 + \frac{A_0^2}{A_{\text{net}}^2}} \frac{M_{\text{net}}}{A_{\text{net}}} H_{\text{eff}} = \frac{A_{\text{net}}}{A_{\text{net}}^2 + A_0^2} M_{\text{net}} H_{\text{eff}} \quad (4.16)$$

$$\tau = \frac{1 + \frac{A_0^2}{A_{\text{net}}^2}}{\frac{A_0}{A_{\text{net}}}} \frac{1}{\frac{M_{\text{net}}}{A_{\text{net}}}} \frac{1}{H_{\text{eff}}} = \frac{A_{\text{net}}^2 + A_0^2}{A_{\text{net}}} \frac{1}{M_{\text{net}} H_{\text{eff}}} \quad (4.17)$$

これより, 組成に対する正味磁化  $M_{\text{net}}$  と正味角運動量  $A_{\text{net}}$  の変化をパラメータと



して用いることで、角周波数 $\omega$ 及び緩和時間 $\tau$ の定性的組成依存性を計算により導くことが可能となる。

ここで、 $M_{\text{net}}$  及び  $A_{\text{net}}$  が組成に対し線形変化すると仮定する。まず、RE と TM の各副格子における  $g$  係数が等しい場合の  $M_{\text{net}}$  及び  $A_{\text{net}}$  の RE-TM 組成比に対する依存性を考える。ここでは、 $g$  係数を  $g_{\text{RE}} = g_{\text{TM}} = 2.00$  と設定した。このとき、副格子の磁化が打ち消し合い正味の磁化が消失する磁化補償組成  $C_M$  において、副格子の角運動量も打ち消し合い正味の角運動量  $A_{\text{net}}$  も消失する。すなわち、磁化補償組成  $C_M =$  角運動量補償組成  $C_A$  となる。このとき、歳差運動周波数  $f(\propto \gamma H_{\text{eff}})$ 、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$ 、実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}} (= g_{\text{eff}} \frac{\mu_B}{\hbar})$  の組成に対する依存性を計算すると、図 4-1 のようになる。

対して、RE と TM の各副格子における  $g$  係数を  $g_{\text{RE}} = 1.85$ 、 $g_{\text{TM}} = 2.00$  とすると、 $M_{\text{net}}$  及び  $A_{\text{net}}$  の RE-TM 組成比に対する依存性は図 4-2 のようになる。この

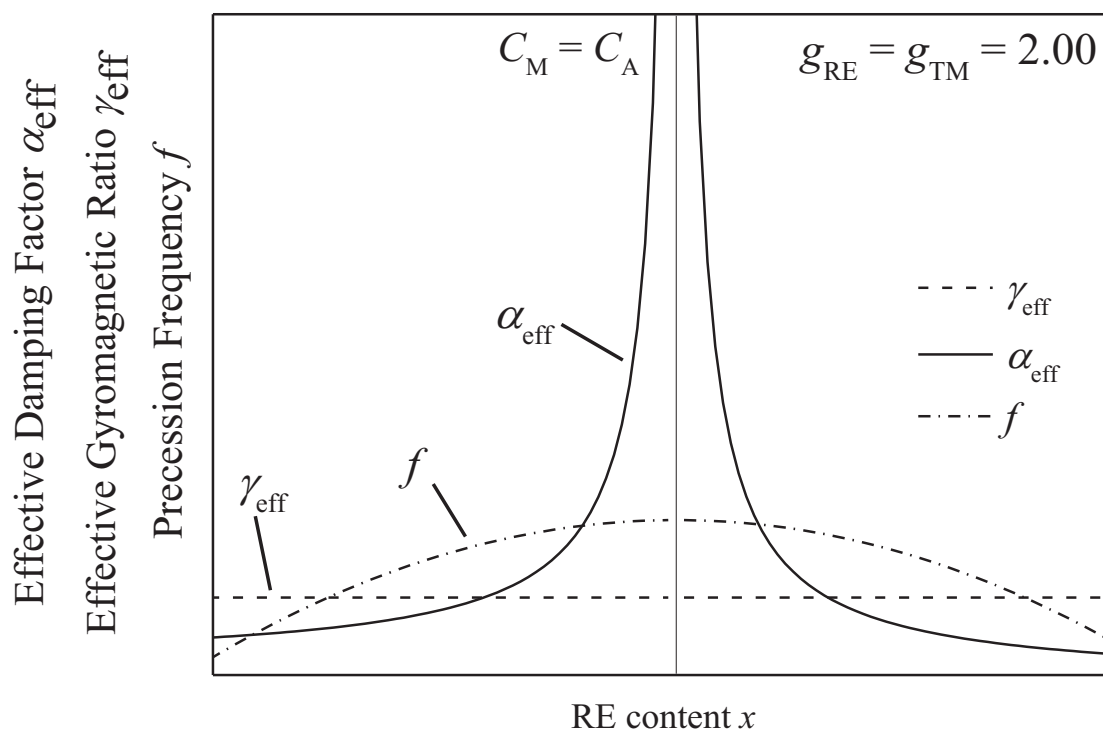


図 4-1  $g_{\text{RE}} = g_{\text{TM}} = 2.00$  としたときの磁化動特性の定性的組成依存性

とき、歳差運動周波数  $f$ , 実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$ , 実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  の組成に対する依存性を計算すると、図 4-3 のようになる。計算結果より、歳差運動周波数  $f$ , 実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$ , 実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  はいずれも、正味角運動量  $A_{\text{net}} = 0$  となる角運動量補償組成  $C_A$  の近傍において著しい増大傾向を示すことがわかる。また、正味磁化  $M_{\text{net}} = 0$  となる磁化補償組成  $C_M$  の近傍では  $f$  及び  $\gamma_{\text{eff}}$  が減少し、 $C_M$  において 0 となる。これは、 $M_{\text{net}} = 0$  であるために磁界よりトルクを受けず、歳差運動が生じないためである。 $M_{\text{RE}} > M_{\text{TM}}$  の組成領域 (以下 RE-rich と呼ぶ) においては、RE の増大に伴い  $\gamma_{\text{eff}}$  は単調増加傾向を示すが、 $\gamma_{\text{eff}}$  と実効磁界  $H_{\text{eff}}$  の積に比例する歳差運動周波数  $f$  は極値を有する。これは、異方性磁界  $H_a$  及び自己減磁界  $H_d$  がそれぞれ、正味磁化  $M_{\text{net}}$  に比例するとしたためである。このとき、歳差運動緩和時間  $\tau$  の組成依存性を  $\tau = \frac{1}{\omega\alpha_{\text{eff}}}$  の関係より導くと図 4-4 のようになり、角運動量補償組成  $C_A$  の近傍において緩和時間  $\tau$  を著しく短縮できることが示される。

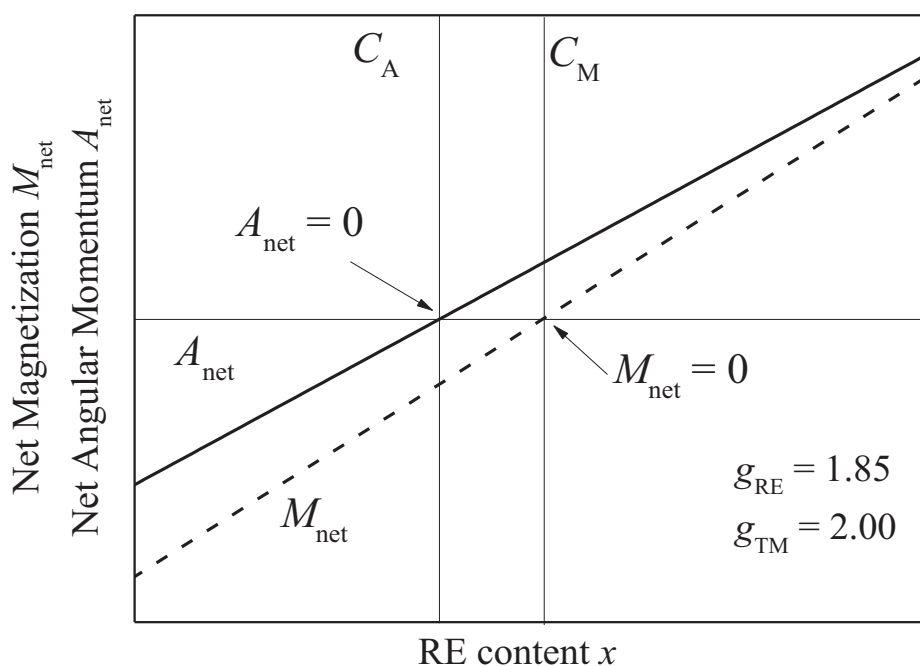


図 4-2 正味磁化  $M_{\text{net}}$  及び正味角運動量  $A_{\text{net}}$  の RE-TM 組成依存性

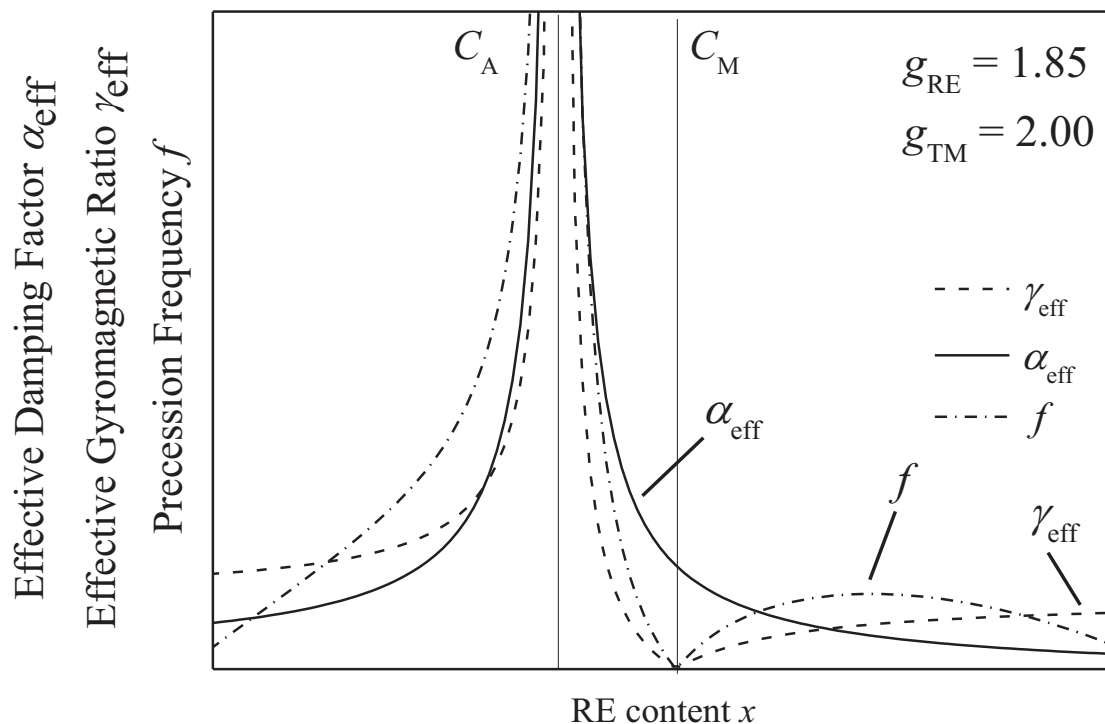


図 4-3 Gilbert ダンピング定数 $\alpha_{\text{eff}}$ , 実効磁気回転比 $\gamma_{\text{eff}}$ , 歳差運動周波数 $f$ の定性的組成依存性 ( $g_{\text{RE}} = 1.85$ ,  $g_{\text{TM}} = 2.00$ )

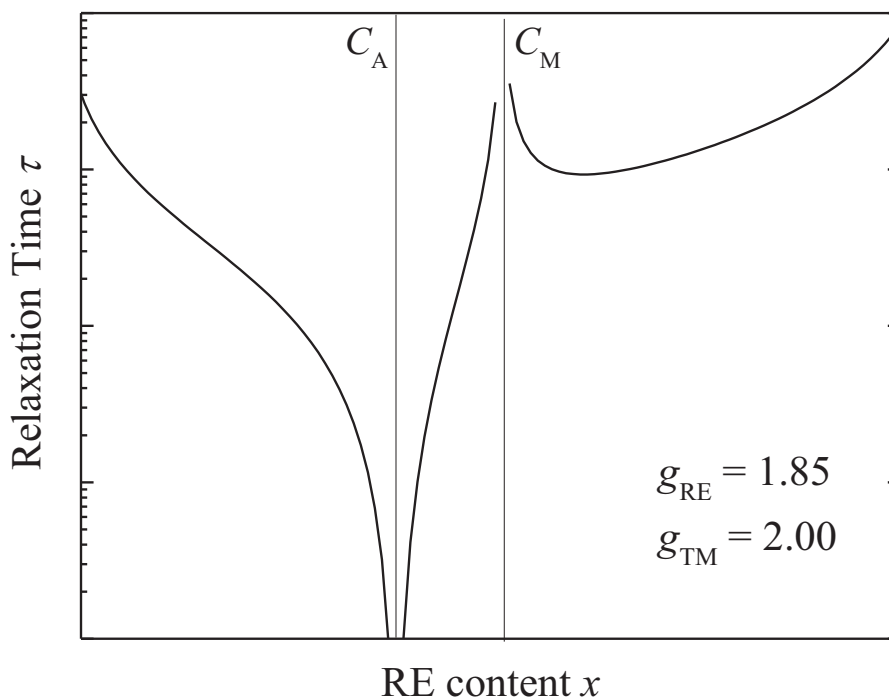


図 4-4 歳差運動緩和時間 $\tau$ の定性的組成依存性 ( $g_{\text{RE}} = 1.85$ ,  $g_{\text{TM}} = 2.00$ )

ここまで、RE-TM フェリ磁性体における磁化動特性の定性的な組成依存性について述べた。なお、温度に対する依存性を考えると、第2章図 2-2 に示したように、RE の副格子磁化  $M_{RE}$  はキュリー温度  $T_c$  に向かい緩やかに減少するが、TM の副格子磁化  $M_{TM}$  は  $T_c$  近傍で急峻に減少する特性を有する。この  $M_{RE}$ ,  $M_{TM}$  の温度特性差により正味磁化  $M_{net}$  は温度に対しても大きな依存性を有し、磁化補償温度  $T_{CM}$  より低温域においては  $M_{RE} > M_{TM}$  (RE-rich),  $T_{CM}$  より高温域においては  $M_{RE} < M_{TM}$  (TM-rich) の特性を示す。これより、各副格子の  $g$  係数が  $g_{RE} < g_{TM}$  の関係にあるとき、角運動量補償温度  $T_{CA}$  は磁化補償温度  $T_{CM}$  よりも高温側に現れ、歳差運動周波数  $f$ , 実効磁気回転比  $\gamma_{eff}$ , 実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  は組成に対する依存性と同様、 $T_{CA}$  近傍で著しい増大傾向を示す。温度に対する依存性を厳密に議論するためには、 $T_c$  の近傍においても各副格子磁化  $M_{RE}$ ,  $M_{TM}$  及び正味磁化  $M_{net}$  が減少することを考慮する必要がある、Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  は角運動量補償温度  $T_{CA}$  近傍で増大した後に温度の上昇と伴に一度減少するが、磁化が減少するキュリー温度  $T_c$  近傍では正味の角運動量  $A_{net}$  も減少することから、 $T_c$  に近づくとつれ再度増大傾向を示す。三重大の小林らは、分子場近似により計算した各副格子磁化の温度依存性を用い、RE-TM フェリ磁性体における磁化動特性の定性的温度依存性を報告している<sup>43)</sup>。

このように、マクロスピンモデルによる定性的な検討結果は、RE-TM フェリ磁性体において、磁化動特性を組成・温度により広範に渡って制御できる可能性を示している。

### 4.3. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

#### 磁化ダイナミクスの温度依存性

前節では、フェリ磁性体の副格子磁化が完全反平行結合したモデルを仮定し、磁化動特性の組成・温度に対する定性的依存性について理論的検討を行った。実際の希土類 (RE) 遷移金属 (TM) 合金フェリ磁性体においては、各副格子の磁気モーメントは Gd 系を除き第2章ですでに述べたように完全な反平行ではなく、磁気モーメントが円錐状に分布する<sup>44), 45)</sup>。また、副格子磁化間の結合は交換エネルギーにより決定されるため、上記モデルにおける検討は完全ではない。本節及び次節では、各副格子の磁気構造が反平行結合した GdFeCo フェリ磁性体を対象に、その磁化動特性の温度・組成に対する依存性を実験的に検討する。

本節では、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における磁化ダイナミクスの温度依存性について述べる。測定試料は、マグネトロンスパッタ法で作製した SiN (60 nm) / Gd<sub>23</sub>Fe<sub>67.4</sub>Co<sub>9.6</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub. を用いた。試料の層構成と加熱・放熱過程の対応については第5章で詳しく述べるが、Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 層は歳差運動を励起するポンプ光による極短時間加熱後の熱拡散を速やかに行うための放熱層 (ヒートシンク層) として挿入した。また、GdFeCo 磁性層と Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 放熱層の間の誘電体 SiN 層は、基板の残留酸素等からの磁性層保護、膜界面の平滑化、放熱層による熱拡散時定数の制御を目的として挿入している。SQUID-VSM にて測定した、正味磁化  $M_{\text{net}}$  の温度依存性 (温度  $T = 50 \sim 400$  K) を図 4-5 に示す。結果より、反平行結合した希土類 (Gd) と遷移金属 (FeCo) の副格子磁化  $M_{\text{RE}}$ ,  $M_{\text{TM}}$  が打ち消し合い正味磁化  $M_{\text{net}}$  が消失する磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  が、本試料において 200 K 付近に存在することが確認できる。

磁化ダイナミクスの測定は、中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅), 繰

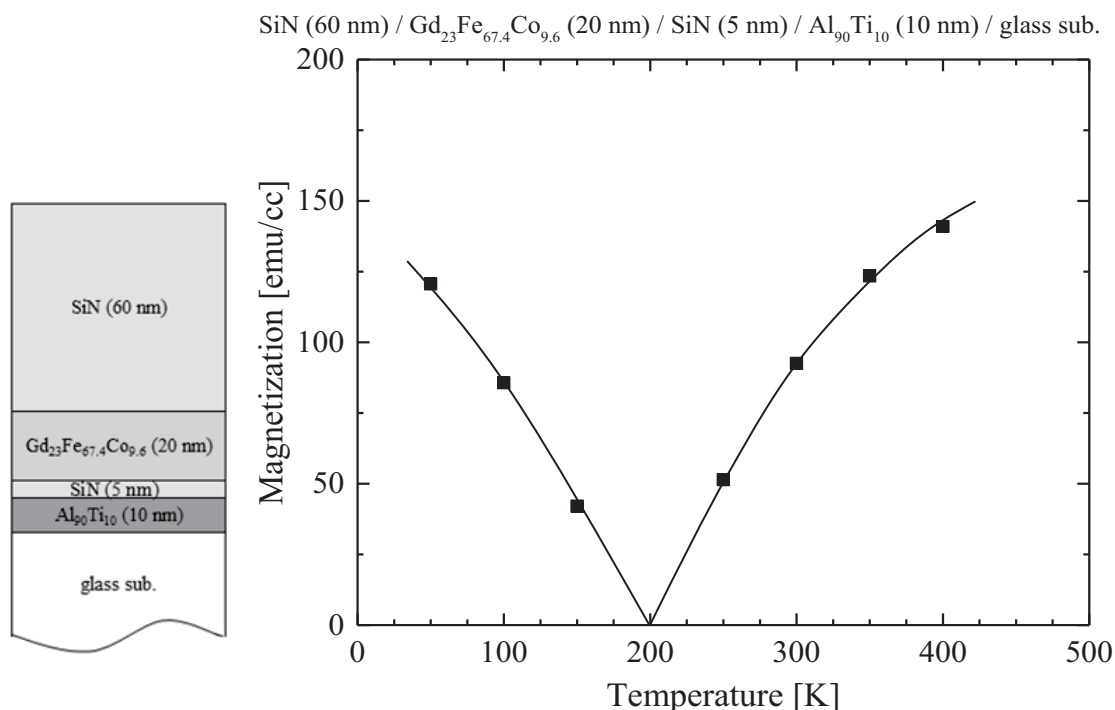


図 4-5 Gd<sub>23</sub>Fe<sub>67.4</sub>Co<sub>9.6</sub> (20 nm) 薄膜における正味磁化の温度依存性

繰り返し周波数 1 kHz のパルスレーザーを光源に用いたポンプ・プローブ法にて行った。プローブ光は BBO 結晶を用い中心波長 400 nm に変換し用いている。ポンプ光、プローブ光の試料表面におけるスポット径はそれぞれ 300  $\mu\text{m}$ , 40  $\mu\text{m}$  とし、また DC 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は膜面法線に対し  $\theta_{\text{H}} = 80^\circ$  より印加し、測定を行った。測定試料はクライオスタット (Oxford Instruments 社製 Microstat He Rectangle Tail) 中に設置し、 $T = 80 \sim 500 \text{ K}$  の温度範囲において制御を行った。まず、温度  $T = 360 \text{ K}$  における本試料の磁化ダイナミクスの外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  依存性を図 4-6 に示す。第 2 章にて述べた様に、磁化歳差運動の周波数  $f$  は磁場に対し依存性を有し、外部磁界  $H_{\text{ext}}$  が十分に大きい場合においては  $H_{\text{ext}}$  に対しほぼ線形に周波数が変化することを確認できる。次に、本フェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料における磁化ダイナミクスの温度依存性の測定結果を図 4-7 に示す。図中の磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  (温度  $T \sim 200 \text{ K}$ ) を境にポンプ光照射後の減磁の方向が反転しているが、これ

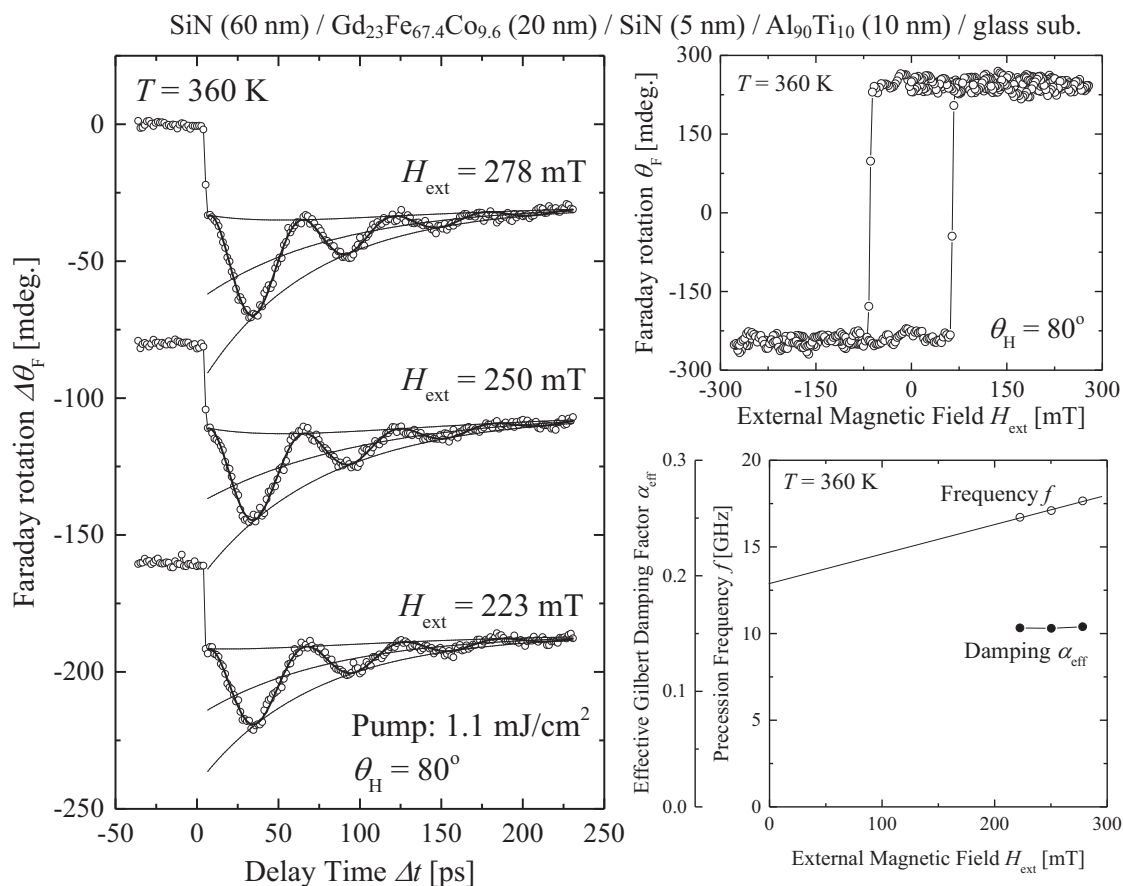


図 4-6 Gd<sub>23</sub>Fe<sub>67.4</sub>Co<sub>9.6</sub> (20 nm) 薄膜における磁化ダイナミクスの外部印加磁場依存性

は磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果が主に遷移金属 (TM) の磁化  $M_{TM}$  に対応するためである<sup>4-6), 4-7)</sup>。外部磁界  $H_{ext}$  の印加により初磁化されているため正味磁化  $M_{net}$  の膜面法線方向成分は各温度条件にて同方向であるが、 $M_{net}$  と観察している TM 磁化  $M_{TM}$  が  $T < T_{CM}$  (RE-rich) の低温域では反対方向、 $T > T_{CM}$  (TM-rich) の高温域では同方向となるためである。磁化歳差運動の測定結果を Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式<sup>4-1), 4-2)</sup>に基づきフィッティングすると、図 4-8 のように歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  の温度依存性を得ることが出来る。結果より、測定した温度範囲 ( $T = 80 \sim 500$  K) において  $f$  は 9.8 GHz $\sim$ 64.0 GHz,  $\alpha_{eff}$  は 0.08 $\sim$ 0.36 と、大きく変化していることが確認できる。そして、 $f$

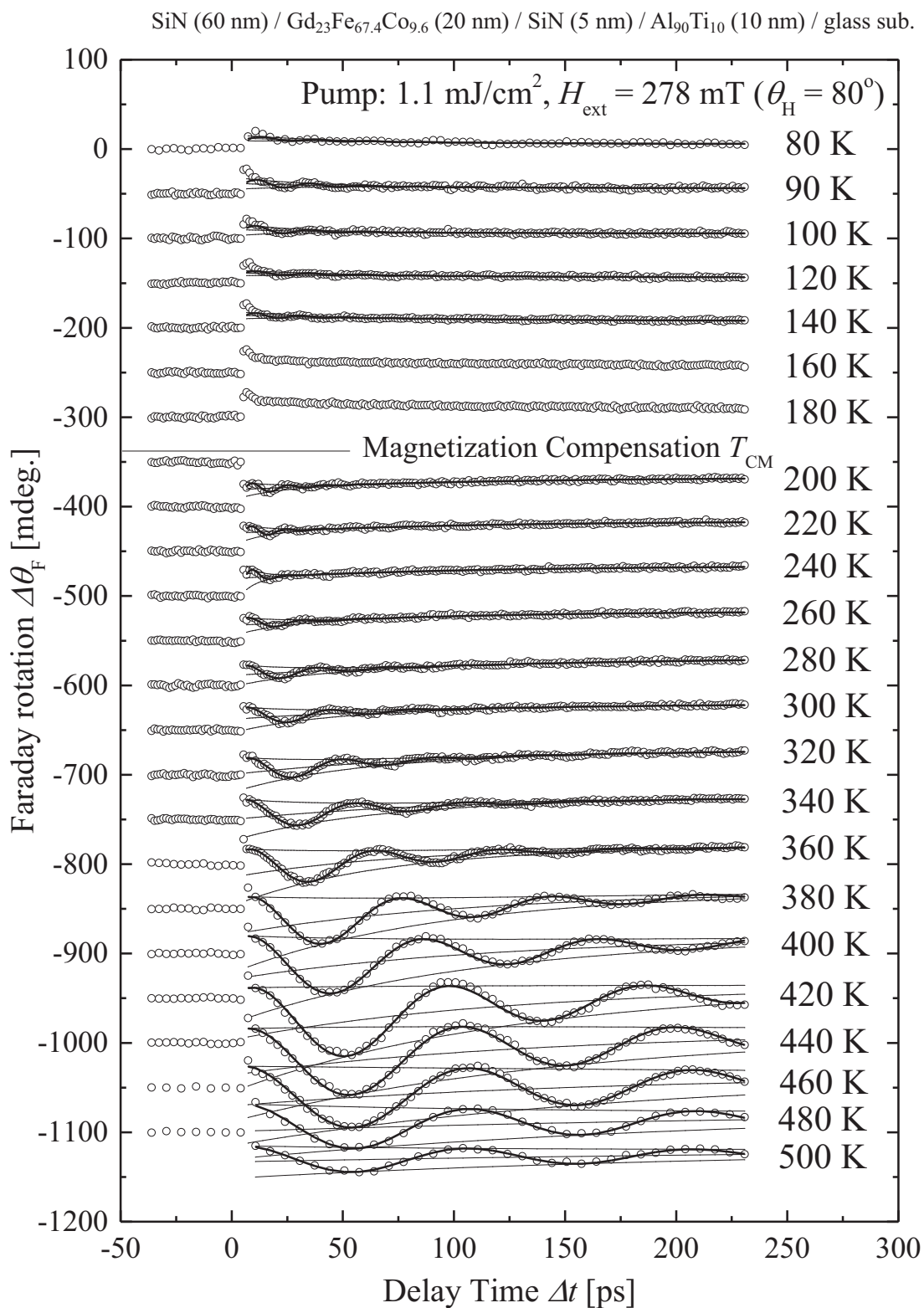


図 4-7 Gd<sub>23</sub>Fe<sub>67.4</sub>Co<sub>9.6</sub> (20 nm) 薄膜における磁化ダイナミクスの温度依存性



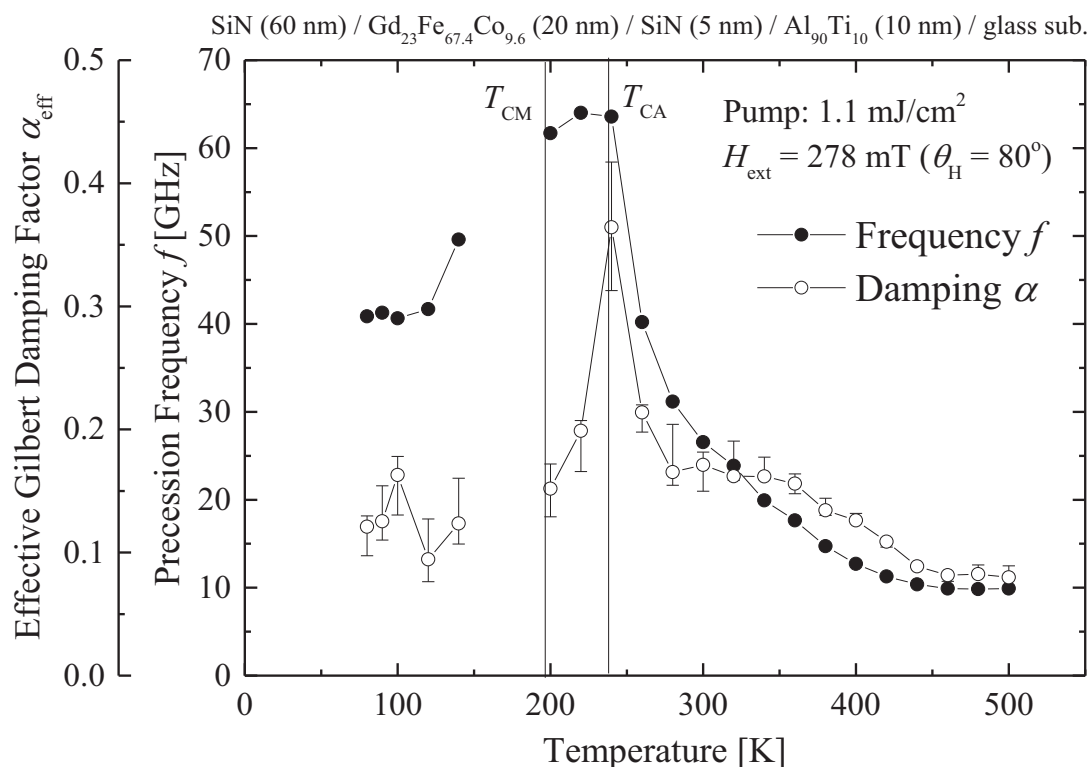


図 4-8 Gd<sub>23</sub>Fe<sub>67.4</sub>Co<sub>9.6</sub> (20 nm) 薄膜における歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の温度依存性

と  $\alpha_{\text{eff}}$  は共に  $T = 240 \text{ K}$  近傍において著しい増大傾向を示していることが確認できる。これは、前節で述べたように、各副格子の  $g$  係数が  $g_{\text{RE}} < g_{\text{TM}}$  の関係にあり、各副格子の角運動量が打ち消し合い正味の角運動量が消失する角運動量補償現象が生じていること、そして、角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  が  $T \sim 240 \text{ K}$  付近に存在することを意味する。このように、GdFeCo フェリ磁性体における磁化動特性の温度依存性は、前節の定性的議論と傾向として一致することを実験的に示した。本傾向は、オランダ Radboud University Nijmegen の C. D. Stanciu らが先行して報告している GdFeCo 薄膜の磁化ダイナミクス計測結果<sup>4-8)</sup>とも一致する。

## 4.4. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

### 磁化ダイナミクスの組成依存性

前節では、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における磁化ダイナミクスの温度依存性について述べた。本節では、GdFeCo の RE-TM 組成比と歳差運動周波数  $f$ , Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の関係について同様に検討を行う。測定試料は、マグネトロンスパッタ法で作製した SiN (60 nm) /  $\text{Gd}_x(\text{Fe}_{87.5}\text{Co}_{12.5})_{100-x}$  (20 nm) / SiN (5 nm) /  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  (10 nm) / glass sub. (Gd 組成  $x = 20.0 \sim 28.5$  at. %, 0.5 at. % 間隔) を用いた。これら試料の室温における保磁力  $H_c$  及び磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  は第2章図 2-6 にて示した通りであり、磁化補償組成  $C_M$  は  $x = 24.0 \sim 24.5$  at. % の範囲にある。

これら試料に対し、DC 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  を膜面法線より  $77^\circ$  傾けて 420 mT 印加し、第3章にて述べた全光ポンプ・プローブ法により、室温にて歳差運動の励起・測定を行った。ポンプ光のエネルギー密度は  $1.2 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  一定とし、ポンプ光とプローブ光の測定試料表面におけるスポット径はそれぞれ  $200 \mu\text{m}$ ,  $30 \mu\text{m}$  とした。また、測定用光源には、中心波長 800 nm, パルス幅約 90 fs (半値全幅) の Ti: Sapphire パルスレーザーをポンプ光・プローブ光ともに用い、Faraday 配置のセットアップで測定を行った。

本測定システムを用いて、上記 SiN (60 nm) /  $\text{Gd}_x(\text{Fe}_{87.5}\text{Co}_{12.5})_{100-x}$  (20 nm) / SiN (5 nm) /  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  (10 nm) / glass sub. 測定試料の磁化歳差運動を励起・測定した結果を図 4-9 に示す。グラフの横軸はポンプ光の試料表面到達からの遅延時間  $\Delta t$ , 縦軸はプローブ光の Faraday 回転角  $\Delta\theta_F$  に比例した測定信号である。結果より、いずれの組成の試料においても、ポンプ光の試料表面到達後に急峻に減磁が行われ、その後減衰振動が開始し、収束している様子が確認できる。この減衰振動が磁化の歳差運動による膜面法線方向成分の変化に相当する。

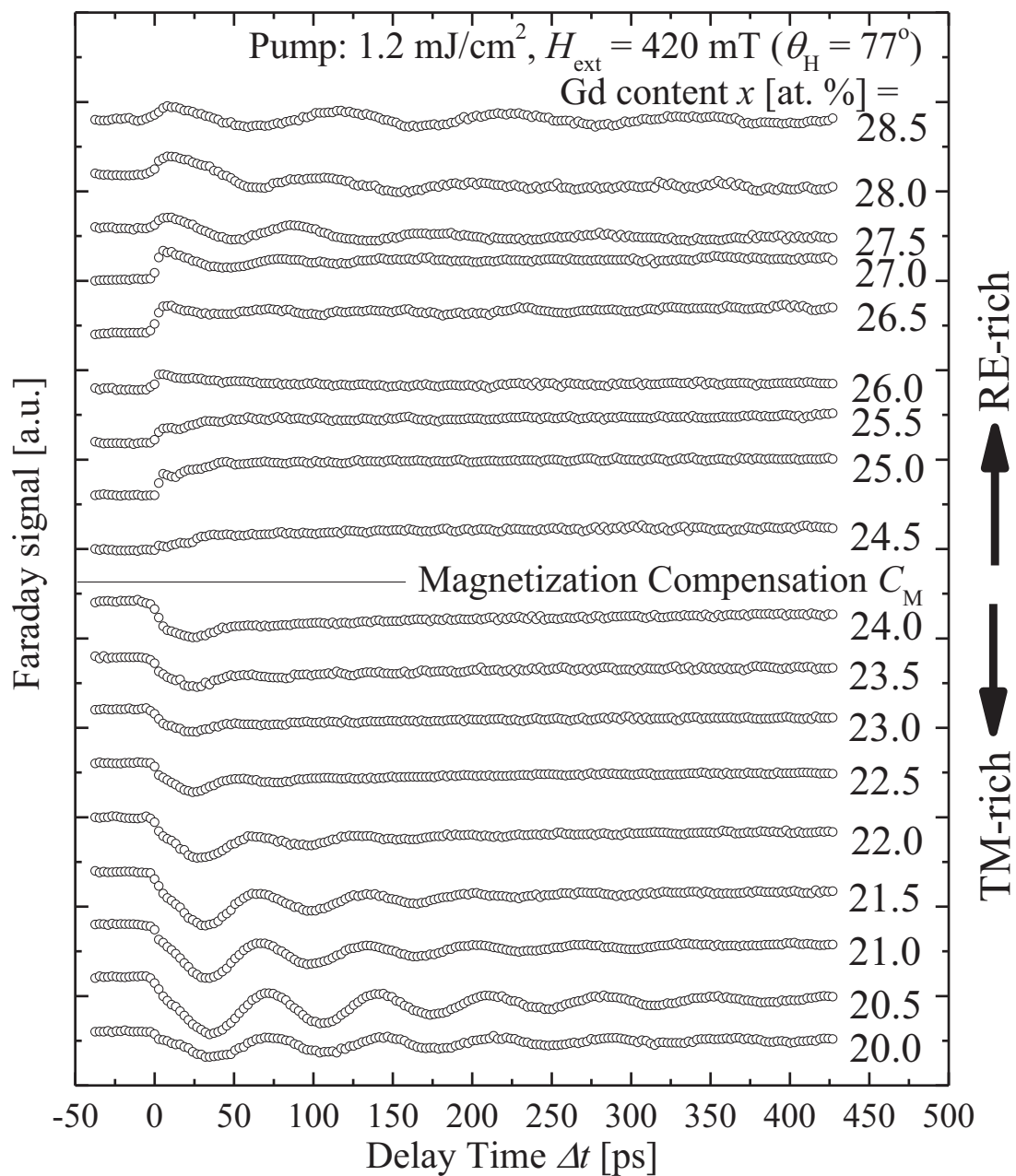


図 4-9  $\text{Gd}_x(\text{Fe}_{87.5}\text{Co}_{12.5})_{100-x}$  (20 nm) における磁化ダイナミクスの組成依存性 (外部印加磁界  $H_{\text{ext}}=420 \text{ mT}$ )

ポンプ光照射による減磁と対応した磁気光学信号の変化方向は、磁化補償組成  $C_M$  ( $x = 24.0 \sim 24.5$  at. %の範囲) を境に反転していることが確認できる。これは、前節における温度依存性の測定結果と同様、可視光域における磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果による測定信号が主に遷移金属 (TM) の磁化  $M_{TM}$  に対応しており<sup>4-6), 4-7)</sup>, 正味磁化  $M_{net}$  と  $M_{TM}$  が  $x < C_M$  (TM-rich) においては同方向,  $x > C_M$  (RE-rich) においては逆方向の関係となるためである。また,  $C_M$  に近づくとつれて歳差運動の測定信号の振幅が小さくなっているが, これは  $M_{net}$  が  $C_M$  に近づくとつれ減少し, 外部磁界  $H_{ext}$  から受けるトルクも減少, 歳差運動の振幅が小さくなるためである。なお,  $x > C_M$  の一定の組成範囲では, ポンプ光照射後の背景温度が磁化補償温度  $T_{CM}$  近傍となることによる  $M_{net}$  の減少と,  $M_{TM}$  の減少による磁気光学効果の低減が重畳するため, 減衰振動成分の観察が困難となる。さらに, 減衰振動成分の振幅は, Gd 組成  $x = 20$  at. % のとき  $x = 20.5$  at. % と比べ小さくなっていることを確認できる。これは正味磁化  $M_{net}$  の増大により異方性磁界  $H_a$  を減ずる方向に働く自己減磁界  $H_d$  も増大するために, 外部磁界  $H_{ext}$  の印加による初期状態での磁化の傾きが大きく, ポンプ光照射による実効磁界  $H_{eff}$  の方向変化が減少するためと考えられる。

ここで, 各組成の試料における磁化歳差運動の測定結果を Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式<sup>4-1), 4-2)</sup>に基づきフィッティングし, 歳差運動周波数  $f$ , 実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  を求めた。Gd 組成  $x$  に対する  $f$  及び  $\alpha_{eff}$  の依存性を図 4-10 に示す。結果より, 測定試料の Gd 組成  $x = 23.5$  at. % の付近において歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  が著しく増大しており, Gd 組成  $x = 23.5$  at. % において  $\alpha_{eff} = 0.31$ ,  $f = 21$  GHz となった。また  $x = 23.5$  at. % から  $C_M$  へかけて,  $f$  及び  $\alpha_{eff}$  がともに減少傾向を示すことが確認できる。これは, 各副格子における角運動量が打ち消し合い正味の角運動量が消失する角運動量補償

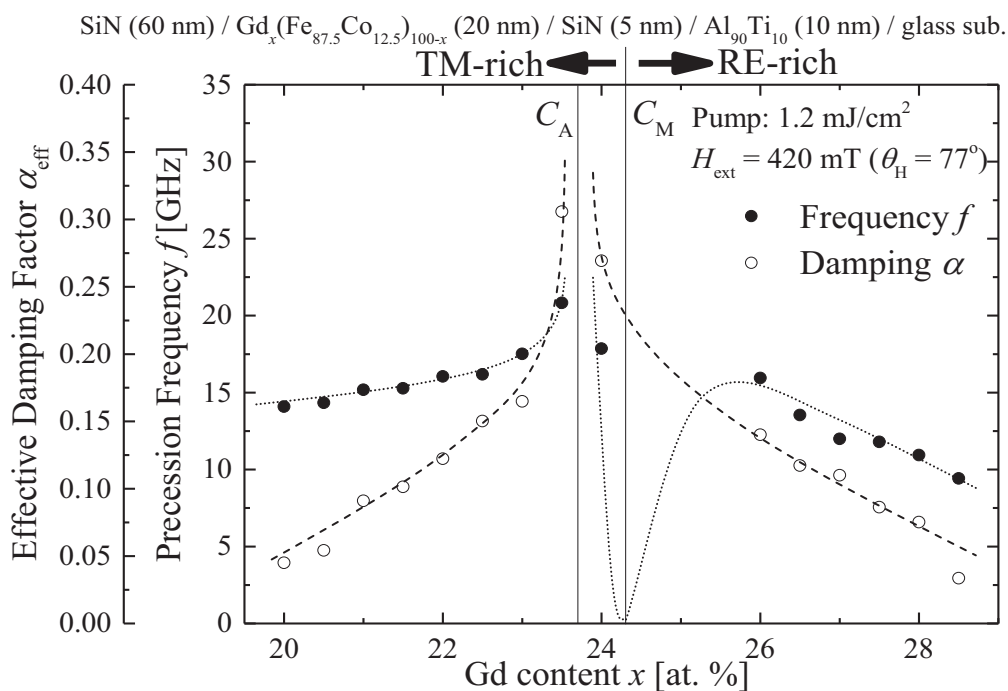


図 4-10 Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (20 nm) における歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の組成依存性

組成  $C_A$  が、室温において  $x = 23.5 \sim 24.0$  at. % の組成範囲に存在することを意味している。そして、市販の HDD 用記録媒体として一般的に用いられている CoCrPt 系媒体のダンピング定数  $\alpha$  ( $= 0.01 \sim 0.04$  程度<sup>49)</sup>) と比較して、GdFeCo フェリ磁性体が角運動量補償点の近傍において非常に高ダンピングな特性を示すことが実験的に明らかとなった。4.2 節で述べた定性的組成依存性の計算結果 (図 4-3) において、 $x > C_M$  の組成域では Gd 組成  $x$  の増大に伴い  $\gamma_{\text{eff}}$  が増大するにも関わらず、歳差運動周波数  $f (\propto \gamma_{\text{eff}} H_{\text{eff}})$  は内部磁界の変化に起因して一旦増大した後に極値をもって減少する傾向を示している。実計測による結果でも  $f$  は定性的組成依存性の計算結果と同様に  $x$  の増大に対し減少傾向を示しており、上記定性的組成依存性と一致する。上記結果において、 $C_A$  は  $C_M$  よりも Gd 組成  $x$  の少ない組成域に存在することから、RE, TM の各副格子における  $g$  係数は  $g_{\text{RE}} < g_{\text{TM}}$  となる。このことは、前節で述べた温度依存性の測定結果とも一致する。

ここで、(a) 一斉磁化回転、(b) 実効磁場  $H_{\text{eff}}$  一定と仮定して、図 4-10 の  $f$  及び  $\alpha_{\text{eff}}$  から求めた磁化反転緩和時間  $\tau$  の組成依存性を図 4-11 に示す。結果より、角運動量補償組成  $C_A$  近傍において磁化反転緩和時間  $\tau$  が減少していることが確認できる。磁化歳差運動を励起・測定した試料中で最も  $C_A$  に組成が近いと考えられる Gd 組成  $x = 23.5$  at. % では、緩和時間  $\tau$  は 27.3 ps と非常に短い。対して、測定組成範囲において最も緩和時間  $\tau$  の長い Gd 組成  $x = 28.5$  at. % のとき緩和時間  $\tau = 503.2$  ps であり、測定組成範囲でにおいて緩和時間が 10 倍以上変化することがわかる。このことは、フェリ磁性薄膜の RE-TM 組成比によって磁化反転時間を大幅に短縮し、高速磁気記録を実現できる可能性を示すものである。なお、現在 HDD で一般に用いられている CoCrPt 系媒体材料のダンピング定数  $\alpha$  は上述のように  $\alpha = 0.01 \sim 0.04$  程度と報告されており<sup>4-9)</sup>、通常用いられる磁気記録へ

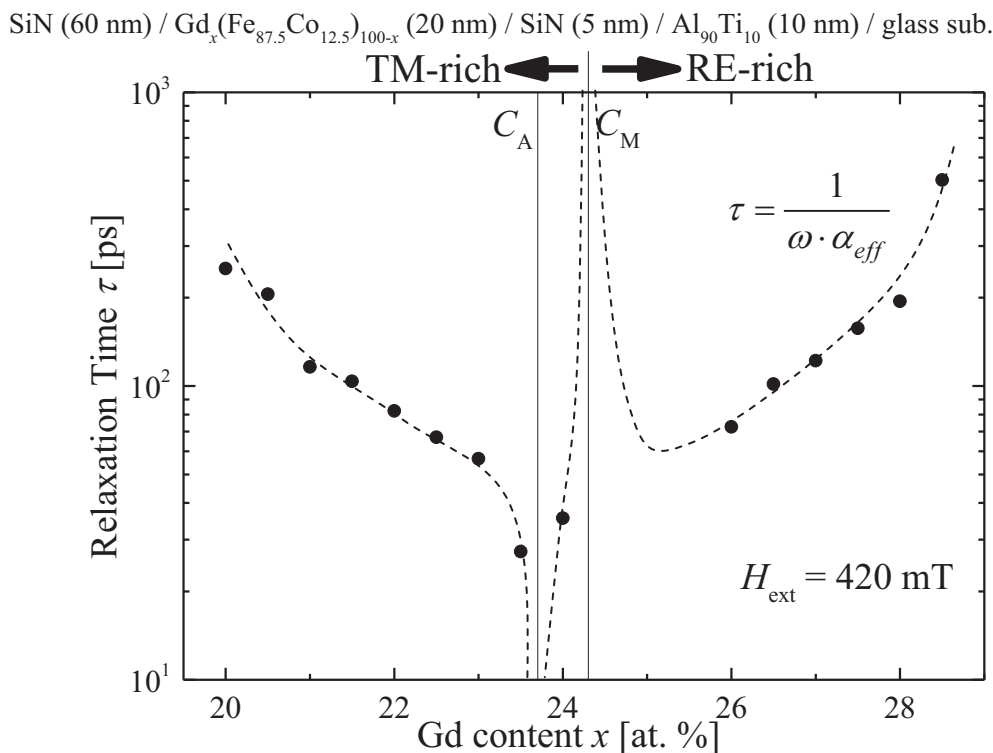


図 4-11 Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (20 nm) における磁化反転緩和時間  $\tau$  の組成依存性

ッドで印加可能な磁界範囲での歳差運動周波数  $f$  は数 GHz であると考えられるため、同様に磁化反転緩和時間  $\tau$  を見積もると数 ns～サブ ns オーダーとなる。本研究で対象としたフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化反転緩和時間  $\tau$  は、上記仮定から導かれる CoCrPt 系媒体の  $\tau$  の 10～100 分の 1 と短く、副格子磁化が反平行結合したフェリ磁性体を媒体材料に用いることで、従来の磁気記録と比べ 10～100 倍程度の大幅な高速化を実現できる可能性を示すものである。

#### 4.5. まとめ

本章では、反平行結合した希土類と遷移金属の副格子磁化からなるフェリ磁性 GdFeCo 薄膜において、近年のマクロスピンモデルにおける検討より予見されていた、副格子磁化の有する角運動量が打ち消し合い正味の角運動量が消失する角運動量補償現象が生じ、その温度及び組成の近傍において実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  が著しい増大傾向を示すことを、磁化歳差運動の温度及び組成に対する依存性の測定により、実験的に明らかとした。そして、角運動量補償点近傍における磁化反転の緩和時間を一斉磁化回転かつ実効磁界一定の仮定のもと見積もった結果、現行のハードディスクドライブの記録媒体に用いられている CoCrPt 系材料と比較して、磁化反転を 10～100 倍程度高速化できる可能性を示した。

## 参考文献

- 4-1) L. D. Landau and E. M. Lifshitz: *Phys. Z. Sowjet.* **8**, 153 (1935).
- 4-2) T. L. Gilbert: *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1955).
- 4-3) T. Kobayashi, H. Hayashi, Y. Fujiwara, and S. Shiomi: *IEEE Trans. Magn.* **41**, 2848 (2005).
- 4-4) R. C. Taylor, T. R. McGuire, J. M. D. Coey, and A. Gangulee: *J. Appl. Phys.* **49**, 2885 (1978).
- 4-5) J. M. D. Coey: *J. Appl. Phys.* **49**, 1649 (1978).
- 4-6) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (S1), 273 (1987).
- 4-7) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).
- 4-8) C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Phys. Rev. B* **73**, 220402(R) (2006).
- 4-9) N. Inaba, Y. Uesaka, A. Nakamura, M. Futamoto, and Y. Sugita: *IEEE Trans. Magn.* **33**, 2989 (1997).



## 第5章 超短パルス光照射による

### GdFeCo 薄膜の極短時間加熱過程

#### 5.1. はじめに

副格子磁化が反平行に結合した希土類 (RE) 遷移金属 (TM) アモルファス合金フェリ磁性薄膜において、各副格子の  $g$  係数が異なるとき、正味磁化が消失する磁化補償点とは別の温度もしくは組成において、正味角運動量が消失する角運動量補償点が存在する。この角運動量補償点の近傍において、歳差運動周波数  $f$  や実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  が著しい増大傾向を示し、これによって磁化反転時間の大幅な短縮を見込めることは、第4章で示した通りである。これら磁化動特性の温度・組成に対する依存性を積極的に利用して磁気記録の高速化を行うための手法として、超短パルス光照射による熱アシスト高速磁化動特性制御を提案する。熱アシスト磁気記録は光照射による加熱効果で磁性体記録材料の熱磁気特性を利用するための手法であり、一般には高密度記録達成のための手法として検討されている。

しかし、数 100 fs 以下の超短パルス光照射による極短時間加熱は、光により電子系が励起された後に一般的に考えられている格子振動による“熱”へ変換される時定数よりも短い時間スケールでの励起のために、従来の熱磁気記録などで用いられたナノ秒程度のパルス光を利用した際と異なり、電子系と格子系の温度状態が異なる過渡的非平衡状態が生じる。そのため、ナノ秒程度のパルス光による加熱及び冷却プロセスを想定した従来の熱磁気に関する検討をそのまま利用することは不可能であり、このような条件下における磁化と電子温度・格子温度との関係は、特に合金系の場合においては明確となっていない。そのため、励起光のパルス幅を単純に短くするだけでは、磁化動特性の温度依

存性を利用できる状態へと極短時間で移行できるとは限らない。超短パルス光照射による極短時間加熱をトリガーとした高速記録の詳細及び実証結果については次の第6章にて述べるものとし、本章では超短パルス光照射によるフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の加熱・減磁過程について、ナノ秒程度のパルス幅を有するパルス光を用いた従来型熱アシスト磁気記録と対比しつつ、電子温度・格子温度と磁化の対応を明確化し、熱磁気特性の時間応答について検討を行う。

## 5.2. 従来型熱アシスト磁気記録

本節では、ナノ秒程度のパルス幅を有するパルス光を光源として用いた、従来型の熱アシスト磁気記録 (HAMR: Heat-Assisted Magnetic Recording) について述べる。近年の磁気記録分野においては、面記録密度数 Tbits / inch<sup>2</sup> 以上の超高密度記録を達成することが目標とされており、そのためには 1 bit あたりの記録マークサイズを数 nm<sup>2</sup> 以下とする必要がある<sup>5-1)</sup>。しかし、磁気エネルギーに比べて熱エネルギーが増大すると、記録磁区が消失する熱揺らぎ問題が生じる。記録磁区を長期間保持するためには、以下の熱安定性の式を満たす必要があるとされている<sup>5-2)-5-4)</sup>。

$$\frac{K_u V}{k_B T} > 60 \quad (5.1)$$

ここで、 $K_u$  は一軸磁気異方性、 $V$  は磁区の体積、 $k_B$  はボルツマン定数、 $T$  は温度である。この問題を解決するために、記録媒体には高い垂直磁気異方性を有する材料が求められ、研究・開発が進められている。例えば、面記録密度 1 Tbit / inch<sup>2</sup> を実現するために要求される 1 bit の磁区サイズは、円形磁区を仮定すると 25 nm × 25 nm 程度であり、この微小記録磁区を保持するために、 $L1_0$ -FePt 規則合金や Co / Pt 多層膜など、 $10^7$  erg / cc オーダーの高い垂直磁気異方性  $K_u$  を有した記録

媒体用材料を用いることが検討されている。バルクの  $L1_0$ -FePt 規則合金は磁化  $M_s = 1140 \text{ emu / cc}$ ,  $K_u = 7 \times 10^7 \text{ erg / cc}$  程度であり, 室温において  $100 \text{ kOe}$  超の高い保磁力  $H_c$  を示し, 理論上の最小磁区サイズ  $3.3 \text{ nm}$  となる<sup>5-5)</sup>。このことから, 面記録密度数  $\text{Tbits / inch}^2$  の次世代高密度磁気記録デバイス実現に向けた記録媒体用材料として期待され, 研究が進められている。しかし, このように一軸磁気異方性  $K_u$  の大きな磁性材料を記録媒体に用いると, 熱安定性は向上するが室温における保磁力  $H_c$  が極めて高く, 磁化反転に必要な磁界が増大するため, 既存の磁気記録ヘッドによって室温で記録することは出来ない。そこで図 5-1 に示すように, 磁性媒体材料における  $K_u \cdot H_c$  の温度特性を利用し,  $K_u \cdot H_c$  の低い高温域まで光照射で加熱, 記録を行う熱アシスト磁気記録が研究されている。

図 5-2 に, 熱アシスト磁気記録の記録原理について示す。まず, 記録層の初期状態を図 5-2 (1) とする。図中の矢印は記録磁区の磁化方向である。ここに図 5-2 (2) のように記録層に対しレーザー照射を行い, レーザー照射された領域の媒体温度を上昇させ, 垂直磁気異方性  $K_u$  及び保磁力  $H_c$  を減少させる。この領域に対し図 5-2 (3) のように外部より磁界を印加する。磁気ヘッドより印加した磁界が加熱領域における記録層の保磁力  $H_c$  を上回ることで磁化反転を引き起こし,

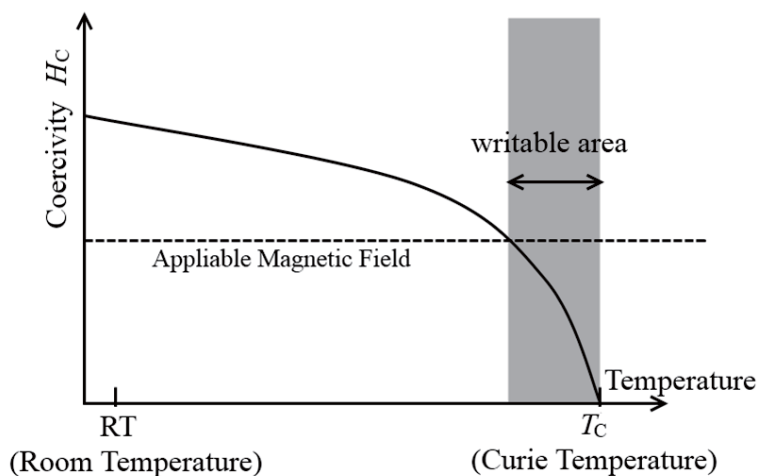


図 5-1 熱アシスト磁気記録における保磁力  $H_c$ -温度特性の利用

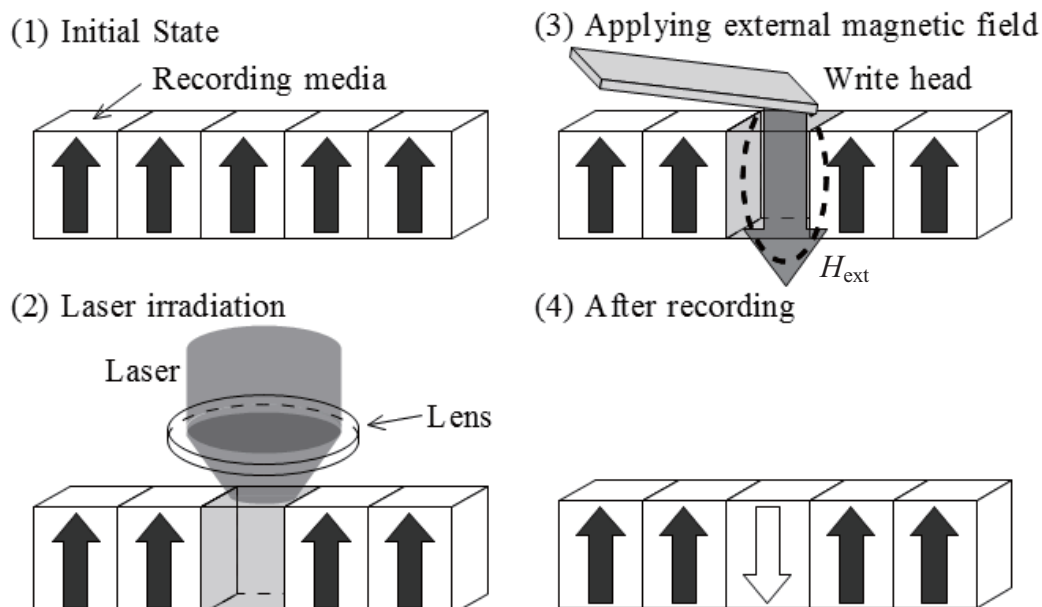


図 5-2 熱アシスト磁気記録の記録原理

図 5-2 (4) のように反転磁区の記録が完了する。このように、レーザーによる加熱を行うことで、室温では高い垂直磁気異方性  $K_u$  及び保持力  $H_c$  を有する記録媒体に対して、磁気記録が可能となる。

この手法は、室温では記録磁区を安定的に保持できるとともに、書き込み時に記録領域のみを加熱することで一時的に不安定状態とし、外部からの磁界印加によって微小磁区を形成するものである。しかし、レーザーなどに代表される伝播光には回折限界が存在し、波長程度以下のスポットサイズに絞ることは、通常の光学系では困難である。そして、加熱領域が記録マークサイズより大きい場合、書き込み時に隣接磁区の記録情報を消去してしまう可能性がある。この問題に対し近年では、プラズモンアンテナ<sup>5-6), 5-7)</sup>と呼ばれる微小金属片を用い、非伝播光である近接場光を局所生成することで、回折限界以下の微小領域を加熱する方法の研究が行われている。

これら方法により記録した微小磁区は、現行のハードディスクドライブ(HDD: Hard Disk Drive)と同様に、トンネル磁気抵抗 (TMR: Tunnel Magneto-Resistance)

素子を用いたヘッドにより漏洩磁界を読み取ることが想定されている他、次世代の高密度記録読み取りヘッド用素子として垂直通電型巨大磁気抵抗 (CPP-GMR: Current-Perpendicular-to-Plane Giant Magneto-Resistance) 素子やスピントルク発振器 (STO: Spin Torque Oscillator) 等の利用も検討されている。

これらの従来検討されてきた熱アシスト磁気記録では、一般にナノ秒程度のパルス幅を有するパルスレーザーを光源に用いる。ナノ秒程度のパルス光による加熱過程では、記録媒体の熱拡散時定数と比べ加熱時間が十分長いため、図 5-3 に示すように光照射開始から媒体の温度が上昇する。そして、熱拡散によりその上昇の傾きは緩やかになっていき、光照射を止めた後は冷却される。この加熱・冷却過程は媒体の熱拡散時定数に大きく依存することから、媒体の層構成についての検討が行われてきた<sup>5-8)-5-10)</sup>。熱アシスト磁気記録においては、冷却時間の短縮を目的とし、一般的には記録媒体に放熱層 (ヒートシンク層) を有する構造をとる。しかし、磁性層と放熱層が隣接した構造とすると、冷却時間を短縮することが可能であるが、媒体の膜面内方向に熱が拡がってしまう。そのため、同強度の光を照射した場合では記録領域の加熱による到達温度が低下し、到達温度を揃えると周囲磁区が温度上昇により上書きされてしまう可能性がある。上記問題に対し、磁性層と放熱層の間に誘電体層を挿入した構造とす

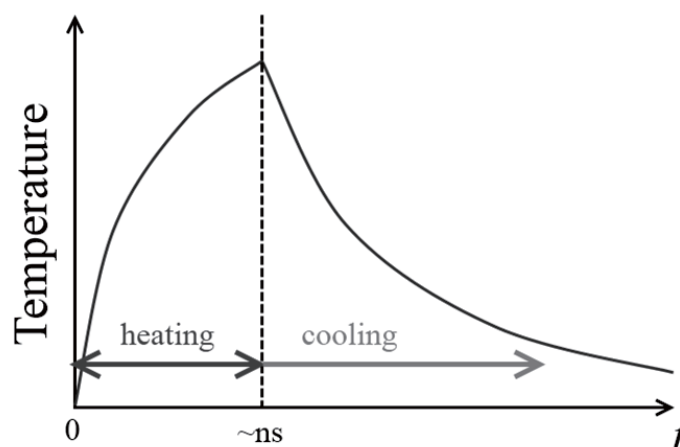


図 5-3 ナノ秒パルス光による媒体加熱・冷却過程の模式図

ることで、放熱特性の低下は抑えつつ面内方向の熱の拡がりを抑制可能である。そのため、熱アシスト磁気記録用媒体では一般に、磁性層と放熱層の間に熱拡散時定数制御のための誘電体層を挿入した構造をとる。

### 5.3. 熱反射法と電子－格子系の過渡的エネルギー非平衡

前節で述べたように、熱アシスト磁気記録では、記録媒体の熱応答特性を設計することが重要である。パルス光により加熱した後の媒体温度の変化を測定する手法として、熱反射 (Thermo Reflectance) 法<sup>5-11), 5-12)</sup>がある。これは、第3章で述べたポンプ・プローブ法により、磁気光学効果の旋光角変化ではなく、金属の温度変化に対応した反射率変化を測定する手法である。試料表面におけるポンプ光のスポット径がプローブ光に対し十分大きく、薄膜の面内方向の熱分布が無視できるときには、極短時間域における熱拡散は膜厚方向 1 次元のみを考えればよい。熱拡散率 (Thermal Diffusivity)  $a$  [ $\text{m}^2 / \text{s}$ ], 膜厚  $d$  [ $\text{m}$ ]の薄膜をパルス光照射により加熱を行う場合、従来検討が行われてきた熱拡散の描像に従うと、膜厚方向の熱分布は以下の時間で概ね平衡化すると考えることが出来る。

$$t_c = \frac{d^2}{a} \quad (5.2)$$

ここで  $a$  は熱伝導率  $\kappa$  (Thermal Conductivity) [ $\text{W} / \text{m} / \text{K}$ ], 密度  $\rho$  [ $\text{kg} / \text{m}^3$ ], 比熱容量  $C_p$  [ $\text{J} / \text{kg} / \text{K}$ ] を用い  $a = \kappa / \rho C_p$  と定義される。例として  $d = 20 \text{ nm}$ ,  $a \sim 2.4 \times 10^{-5} \text{ m}^2 / \text{s}$  ( $\kappa = 83.5 \text{ W} / \text{m} / \text{K}$ ,  $\rho = 7.874 \text{ g} / \text{cm}^3$ ,  $C_p = 24.97 \text{ J} / \text{K} / \text{mol} \sim 447 \text{ J} / \text{kg} / \text{K}$ )<sup>5-13)</sup>の鉄薄膜を考えると、式(5.2)より  $t_c \sim 1.67 \times 10^{-11} \text{ s}$  と見積もることが出来る。

しかし、パルス幅数 100 fs 以下の超短パルス光照射による極短時間での加熱過程を考えると、格子振動よりも短い時間スケールでの励起のために格子系は光から直接エネルギーを受け取ることができず、図 5-4 に示すように、光よりエ

エネルギーを受け取った電子系から格子系へのエネルギー移動を考慮する必要がある。そのため、電子系と格子系のエネルギー状態には過渡的非平衡が生じる。電子系から格子系へのエネルギー移動により平衡化が完了するまでにはピコ秒程度の時間を要する。そのため、ピコ秒オーダー以下の時間スケールにおいて、従来の電子系－格子系平衡下における検討をそのまま利用することはできない<sup>5-14)</sup>。超短パルス光照射後の極短時間における電子系－格子系エネルギー非平衡は、電子温度と格子温度という概念にて説明した2温度モデル (Two-temperature model)<sup>5-15), 5-16)</sup>により取り扱い・検討が可能となる。2温度モデル及び電子系－格子系非平衡下における反射率変化との対応については次節にて述べる。そして、試料表面で励起された遍歴電子系はその場に留まらず伝導電子として金属中を移動するため、上記熱拡散による膜厚方向温度平衡化に要する  $t_0$  よりも早い時間スケールで、金属層内において電子系のエネルギー散逸・膜厚方向の平衡化が生じると考えられる。なお、超短パルス光照射によるインパルス的な極短時間加熱では、加熱領域の体積膨張とその後の体積収縮の過程で弾性波が生じる可能性がある。そのため全光ポンプ・プローブ法による熱反射測定では、薄膜試料表面の振動によってプローブ光の反射角及び反射強度に影響を及ぼすことが懸念される。しかし、電子系から格子系へのエネルギー移動により格子温度が上昇するまでにはピコ秒オーダーの時間を要するためポンプ光の照射からサブ ps の時間領域では、この弾性波の影響は無視できると考えられる。

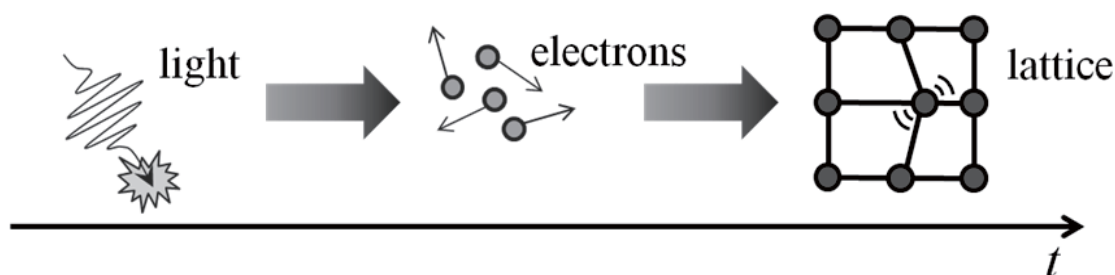


図 5-4 超短パルス光による電子・格子温度の非平衡加熱

## 5.4. 2 温度モデル

前節では、金属薄膜における短時間での温度推移を測定する方法として、全光ポンプ・プローブ法による熱反射測定について述べた。また、超短パルス光照射による極短時間加熱の過程において、電子系と格子系のエネルギー状態に過渡的非平衡が生じることをあわせて述べた。本節では、上記のように電子系と格子系が異なる温度状態をとるときを扱う、2 温度モデル (Two-temperature model)<sup>5-15), 5-16)</sup> について簡単に述べる。

最初に、電子温度の定義について考える。温度とは、速度分布関数の広がりである。すなわち、一般に温度 (格子温度) とは物質を構成するイオンの速度のことである。ここで、電子系と格子系それぞれのエネルギー状態を温度として表したものが電子温度及び格子温度という概念である。なお、電子はイオンと比較して質量が非常に軽く、同じエネルギー状態においても高速となる。そのため、超短パルス光照射による極短時間加熱での電子系・格子系非平衡下における電子温度のピークは、その後の平衡下における格子温度の上昇のピークと比べ高いものとなる。

まず、電子系・格子系平衡下における通常の熱拡散方程式を考える。 $J$  を熱流束密度 [ $\text{W} / \text{m}^2$ ],  $T$  を温度 [ $\text{K}$ ],  $\kappa$  を熱伝導率 (Thermal Conductivity) [ $\text{W} / \text{m} / \text{K}$ ] とすると、フーリエの法則より、

$$J = -\kappa \text{grad}T \quad (5.3)$$

となる。このとき、エネルギー密度  $\rho_E$  [ $\text{J} / \text{m}^3$ ], 時間  $t$  を用いると

$$\frac{\partial \rho_E}{\partial t} = -\text{div}J \quad (5.4)$$

の関係がエネルギー保存則より導かれる。エネルギー密度の増加率は単位体積当たりの熱容量  $C_v$  [ $\text{J} / \text{m}^3 / \text{K}$ ] を用い



$$\frac{\partial \rho_E}{\partial t} = C_v \frac{\partial T}{\partial t} \quad (5.5)$$

で表される。熱伝導率 $\kappa$ が一定かつ等方的であるとき、温度 $T$ は

$$C_v \frac{\partial T}{\partial t} = -\text{div} \mathbf{J} = -\text{div}(-\kappa \text{grad} T) = \kappa \nabla^2 T = \kappa \Delta T \quad (5.6)$$

に従う。これを熱拡散 (熱伝導) 方程式と呼ぶ。このとき、 $\kappa / C_v (= \kappa / \rho C_p)$  は前節における熱拡散率 $a$ と対応する。なお、物体に内部発熱 $Q$  [ $\text{W} / \text{m}^3$ ] がある場合、エネルギー保存則の式 (5.4) は

$$\frac{\partial \rho_E}{\partial t} = -\text{div} \mathbf{J} + Q \quad (5.7)$$

となる。そのため、熱拡散方程式 (5.6) は

$$C_v \frac{\partial T}{\partial t} = \kappa \Delta T + Q \quad (5.8)$$

となる。

金属薄膜に対するレーザー照射での加熱を考える。ポンプ光の照射スポット領域に対しプローブ光による測定を行う領域が十分小さく、面内の熱分布が無視できるとき、極短時間での熱拡散方程式は薄膜の膜厚方向 1 次元として扱うことが可能となる。よって、以上の式を 1 次元に簡略化すると、

$$J = -\kappa \frac{\partial T}{\partial x} \quad (5.9)$$

$$\frac{\partial \rho_E}{\partial t} = -\frac{\partial J}{\partial x} \quad (5.10)$$

$$\frac{\partial \rho_E}{\partial t} = C_v \frac{\partial T}{\partial t} \quad (5.11)$$

$$C_v \frac{\partial T}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x} \left( -\kappa \frac{\partial T}{\partial x} \right) = \kappa \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (5.12)$$

と表すことが出来る。

ここで、電子系と格子系 2 つの温度について上述の 1 次元熱拡散方程式を同様に考えると、電子系と格子系に対し下記の 2 式を立てることが出来る<sup>5-16)</sup>。

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - G(T_e - T_l) + H \quad (5.13)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \kappa_l \frac{\partial T_l}{\partial x} \right) + G(T_e - T_l) \quad (5.14)$$

ここで、 $G$ は電子-格子間のカップリングパラメータ、 $T_e$ 、 $T_l$ は電子及び格子の温度、 $C_e$ 、 $C_l$ は電子及び格子の熱容量、 $\kappa_e$ 、 $\kappa_l$ は電子及び格子の熱伝導率である。また、格子振動よりも十分短い数 100 fs オーダー以下のパルスレーザー照射による極短時間加熱過程においては、格子系は光から直接エネルギーを受け取れない点を考慮し、光による熱供給の項である  $H$  は電子系の熱拡散方程式へのみ導入する。格子系の熱拡散は電子系の熱拡散と比較して十分遅く、 $\sim$ ps オーダー以下の極短時間領域における議論にはほぼ影響しないため無視することが出来る。すなわち、格子系の熱拡散方程式 (5.14) は下記の式

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l) \quad (5.15)$$

のように表すことが出来る。ここで、電子の熱容量は電子温度に対しほぼ線形であるため、定数 $\gamma$  [J/m<sup>3</sup>]を用いて

$$C_e = \gamma T_e \quad (5.16)$$

と表すことが出来る。また、電子系の熱伝導率 $\kappa_e$ は、電子温度  $T_e$  及び格子温度  $T_l$ を用い、以下のように表すことが出来る。

$$\kappa_e = \kappa_0 \frac{T_e}{T_l} \quad (5.17)$$

なお、 $\kappa_0$ は電子系・格子系平衡下における熱伝導率である。

電子温度  $T_e$  と格子温度  $T_l$  が非平衡状態にある極短時間領域での電子温度  $T_e$  の変化を見積もる方法として、超短パルス光を光源に用いて反射率や透過率を測定する方法が報告されている<sup>5-17)</sup>。電子温度  $T_e$  の上昇は、金属中の誘電率に変化をもたらす。そのため、超短パルス光により反射率変化率 $\Delta R/R$ もしくは透

過率変化率  $\Delta T / T$  を測定し、2 温度モデルとの比較を行うことで、電子温度の変化を見積もることが可能となる。

なお、強磁性材料において、3 温度モデルとして電子・スピン・格子の温度状態を考えることがあるが、それぞれに対し熱拡散方程式を立てる点は同様である。典型例として、超短パルス光照射後の Ni 薄膜の電子・スピン・格子温度の過渡的非平衡状態を 3 温度モデルにより検討された結果を図 5-5 に示す<sup>5-18)</sup>。

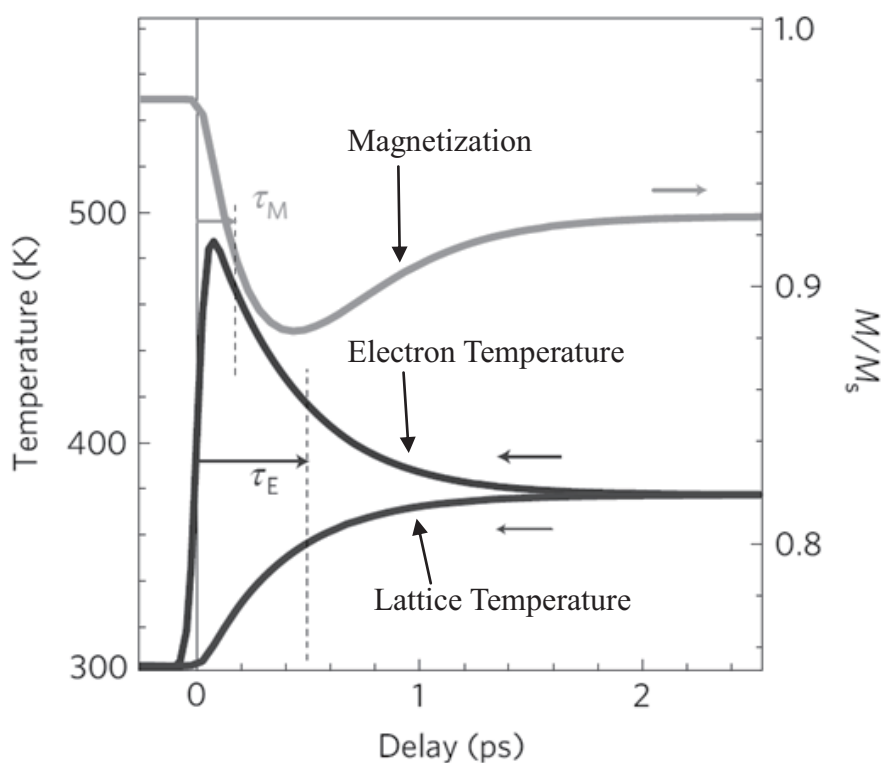


図 5-5 Ni 薄膜の超短パルス光照射後に生じる電子・スピン・格子温度の過渡的非平衡過程の 3 温度モデルにおける検討例<sup>5-18)</sup>

## 5.5. 超短パルス光照射による

### GdFeCo 薄膜の極短時間加熱過程

本章では、5.3 節までにおいて、ナノ秒程度のパルス光によって加熱を行う従来の熱アシスト磁気記録と、数 100 fs 以下の超短パルス光による極短時間での加熱過程について、その違いを述べた。また前節では、電子温度と格子温度の過渡的非平衡を扱った 2 温度モデルについて簡単に述べた。磁化の温度特性について従来行われてきた議論は電子温度と格子温度が平衡した状態におけるものであり、電子温度－格子温度の過渡的非平衡状態は、超短パルス光照射による極短時間加熱を行って熱磁気特性を利用する高速磁化制御を応用上の目的とした本研究において重要な課題である。この課題を解決するためには、電子温度・格子温度の 2 つの温度と磁化との対応関係、そして超短パルス光極短時間加熱過程における磁化の応答について議論を行う必要がある。

Fe, Ni, Co などの 3d 遍歴電子が磁性を担う 3d 遷移金属単体の薄膜に超短パルス光を照射した極短時間加熱過程では、サブ ps で減磁が行われることが報告されている<sup>5-18)-5-21)</sup>。一方で、主に 4f 局在電子が磁性を担っている希土類単体の薄膜における極短時間加熱過程についても僅かではあるが報告されており、単体 Gd の減磁には 40~50 ps 程度を要するとされている<sup>5-18), 5-22), 5-23)</sup>。これは図 5-6 に示すように、波長 800 nm の光から 4f の局在電子系は直接エネルギーを受け取れないためである。そのため、5d6s の遍歴電子系が励起された後、5d スピンへのエネルギー伝搬は遷移金属と同様に 100 fs 以下の時間域で行われるが、Gd においては 5d スピンの磁気モーメントは 1 原子あたり 0.55  $\mu_B$  しかなく、7.0  $\mu_B$  と磁性の大部分を担う 4f スピンへは格子を介してエネルギー伝搬されるためであると考えられている<sup>5-22)</sup>。

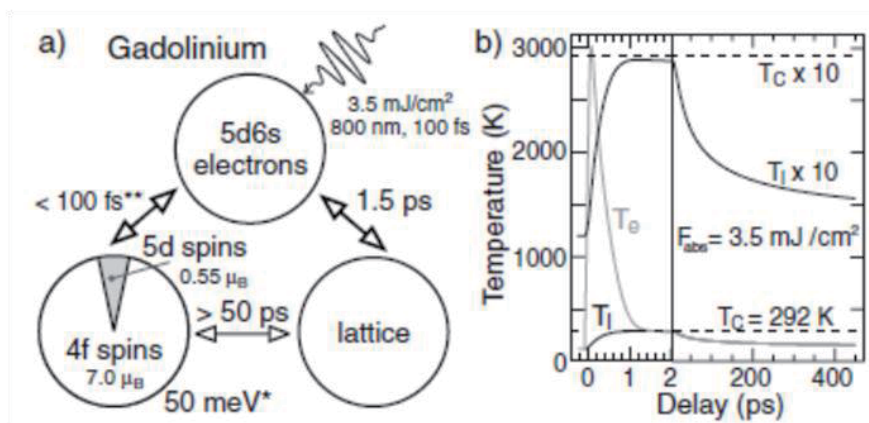


図 5-6 超短パルス光照射によるガドリニウムの励起過程と 2 温度モデルによる電子温度・格子温度の検討結果<sup>5-22)</sup>

しかし、希土類 (RE) と遷移金属 (TM) からなる GdFeCo 合金についての報告はなく、フェムト秒オーダーの超短パルス光によって励起を行った場合の、磁化の応答に要する時間スケールは明確でない。そこで、フェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜試料について、超短パルス光励起の減磁過程を測定し、検討を行った。

測定試料には、マグネトロンスパッタ法で作製した SiN (60 nm) / Gd<sub>20</sub>Fe<sub>70</sub>Co<sub>10</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub. を用いた。RE-TM フェリ磁性体の磁気特性については第 2 章で述べているが、本試料は室温より高温側で常に遷移金属磁化  $M_{TM}$  が希土類磁化  $M_{RE}$  に対し優勢であり、正味磁化  $M_{net}$  と  $M_{TM}$  は同方向である。中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅), 繰り返し周波数 1 kHz の超短パルスレーザーにより光励起し、磁化と対応する磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果の旋光角変化 (Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$ ・Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_f$ ) と、電子温度に対応する<sup>5-24)</sup> 反射率変化率  $\Delta R / R$ ・透過率変化率  $\Delta T / T$  の信号を OPA (Optical Parametric Amplifier) により中心波長 420 nm に変換したプローブ (測定) 光にて測定した。上記測定システムの概略図を図 5-7 に示す。なお、可視光における GdFeCo の磁気光学効果は、第 2 章でも述べたように主に  $M_{TM}$  による<sup>5-25)-5-27)</sup> ものであり、本測定条件においては正味磁化  $M_{net}$  と磁気光学効果による

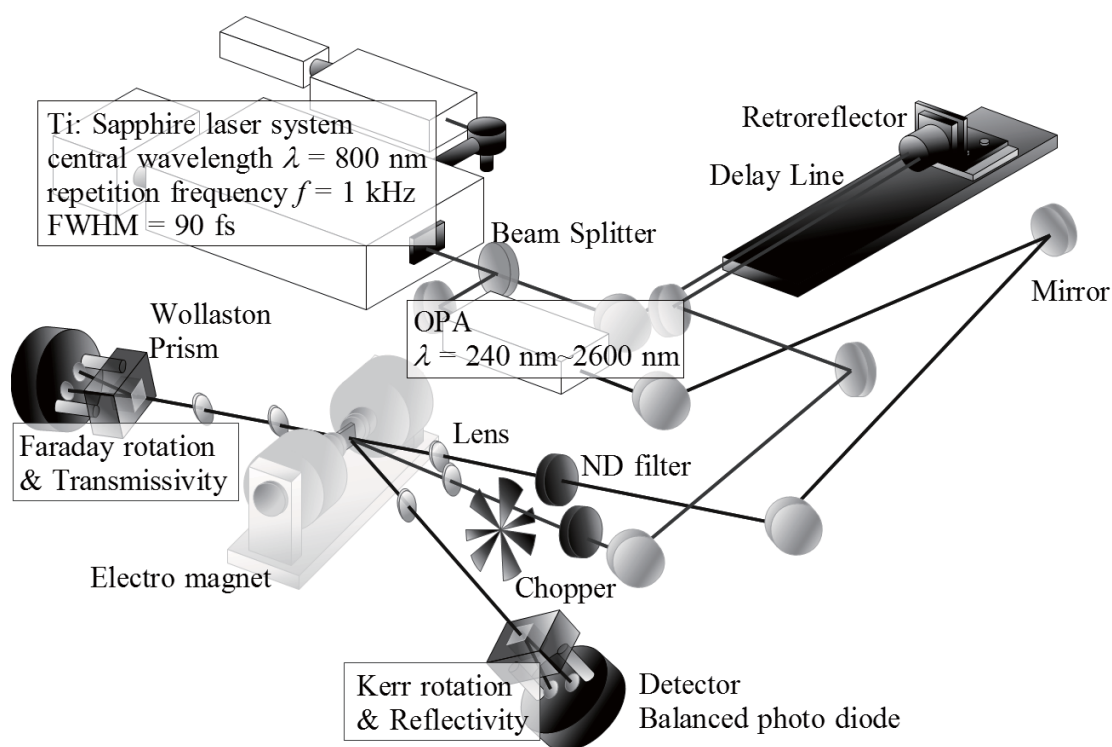


図 5-7 ポンプ・プローブ法による反射率・透過率変化及び磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果の時分解測定セットアップの模式図

測定信号は符号が一致する。ポンプ (励起) 光の試料表面におけるスポット径は  $200 \mu\text{m}$ , エネルギー密度は  $1.5 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  とし, 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は試料膜面法線より  $70^\circ$  傾けて  $140 \text{ mT}$  印加し, 測定を行った。

図 5-8 に, 超短パルスポンプ光の試料表面到達前後における Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$ , Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$ , 反射率変化率  $\Delta R / R$ , 透過率変化率  $\Delta T / T$  の時間発展の測定結果を規格化したものを示す。結果より, 反射率及び透過率の急峻な変化に続き, サブ ps の時間領域で Kerr 回転角及び Faraday 回転角の変化が生じていることを確認できる。ここで, 電子温度を反映する<sup>5-24)</sup>反射率変化率  $\Delta R / R$  と透過率変化率  $\Delta T / T$  の測定結果に着目すると, 回復の途中から挙動が異なっていることが確認できる。これは, ピコ秒程度までの領域では主にパルス光照射後の膜厚方向でのエネルギー散逸によると考えられる。また, それ以降の時間

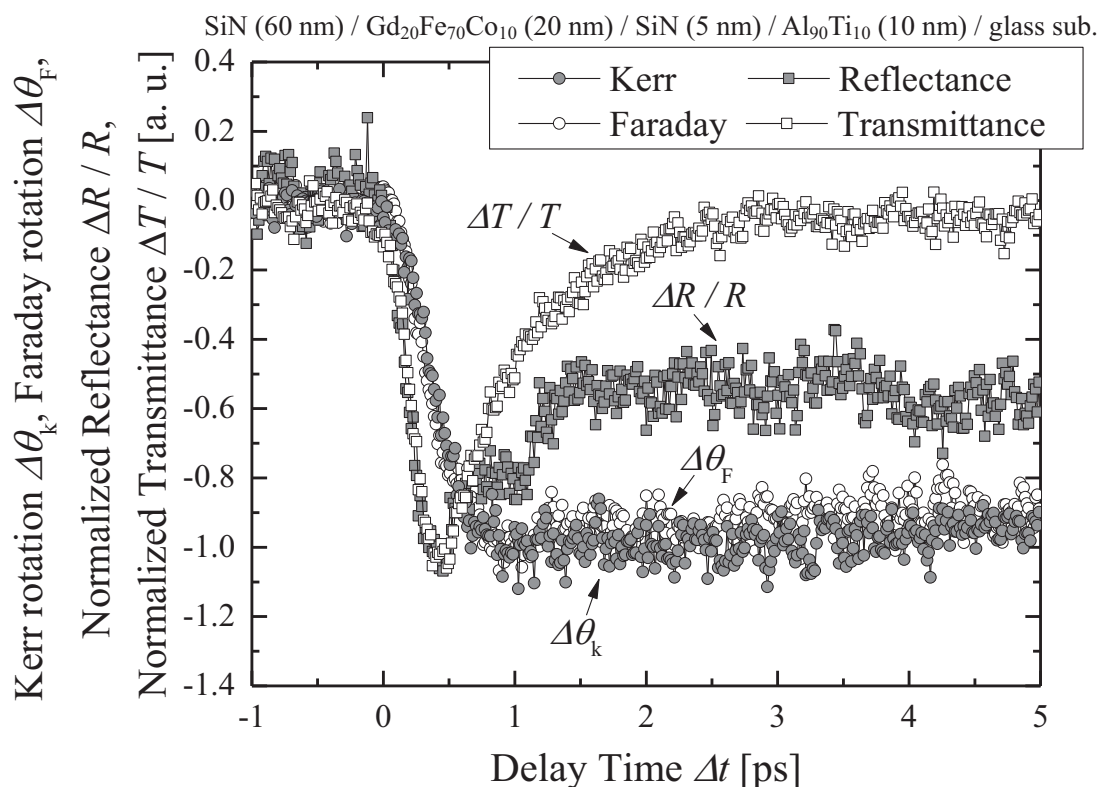


図 5-8 Gd<sub>20</sub>Fe<sub>70</sub>Co<sub>10</sub> (20 nm) 薄膜における Kerr 回転角変化 $\Delta\theta_k$ , Faraday 回転角変化 $\Delta\theta_F$ , 反射率変化率 $\Delta R/R$ , 透過率変化率 $\Delta T/T$ の時間発展の測定結果

領域では、電子系と格子系のエネルギー平衡化により極短時間加熱されたといえる状態となり、熱膨張により発生する弾性波の影響も反映していると考えられる。測定結果において、 $\Delta R/R$ と $\Delta T/T$ はポンプ光の到達後約 0.5 ps で最大となりその後回復しているのに対し、 $\Delta\theta_k$ と $\Delta\theta_F$ の初期状態からの変化もサブ ps で概ね完了していることを確認できる。

しかし、サブ ps スケールの時間領域における磁気光学効果と磁化との関係については未だ議論があり<sup>5-28), 5-29)</sup>,  $\Delta\theta_k$ 及び $\Delta\theta_F$ の急峻な変化を単純に磁化と対応づけることは出来ない。そこで、同じ組成・層厚の磁性層を有し、電子温度と格子温度の変化が明確に異なると予測される層構成の試料を作製し、磁化との対応についてさらなる検討を行った。

測定試料は、同じ組成・膜厚の磁性層を有する3種の層構成の試料 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 nm, y = 10 nm, Sample II: x = 0 nm, y = 10 nm, Sample III: x = 5 nm, y = 0 nm) を、マグネトロンスパッタ法にて作製し、実験に用いた。各試料の層構成を図5-9に示す。これらは、従来から熱アシスト磁気記録用の媒体として検討された層構成であり、5.2節でも述べた様に熱拡散時定数が大きく異なる。そのため、ナノ秒程度のパルス光照射による加熱では、到達温度や放熱時間に明確な差が現れることが知られている。一方、フェムト秒オーダーの超短パルス光照射による極短時間加熱過程においても、これらの層構成において応答に差が生じると考えられる。Sample I と Sample II はともに導電性を有する Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 放熱層を有するが、Sample I は GdFeCo 磁性層と Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 放熱層の間に非導電性の SiN 層を挿入している。そのため、Sample II においては磁性層－放熱層間にて伝導電子を介した電子系のエネルギー散逸が生じると考えられるのに対し、Sample I においては層間での電子系のエネルギー散逸が抑制され、格子温度に対してのみ放熱層の効

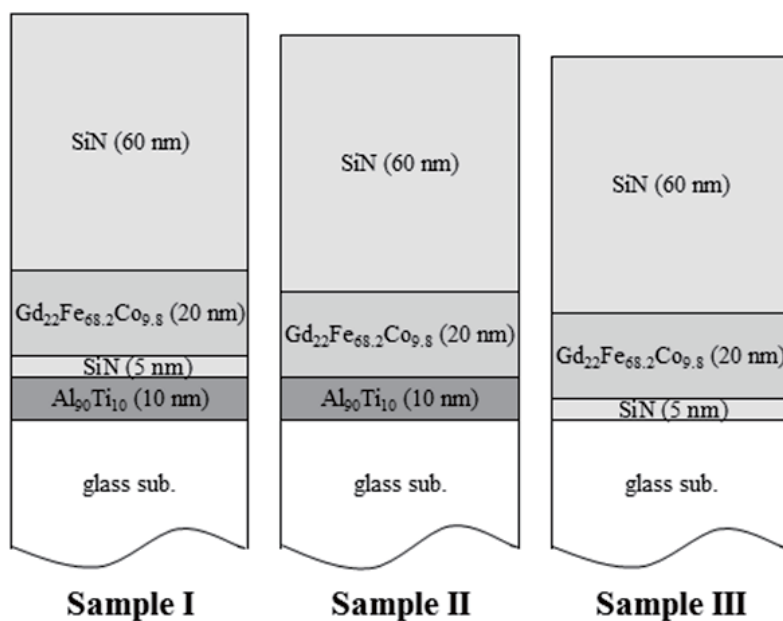


図 5-9 極短時間加熱・減磁過程測定用 GdFeCo 試料 3 種の層構成



果が現れると考えられる。

中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅), 繰り返し周波数 1 kHz の超短パルスレーザーをポンプ (励起) 光として用い, 磁化に対応する磁気光学 Kerr 効果の旋光角 (Kerr 回転角)  $\Delta\theta_k$  と電子温度に対応する反射率変化率  $\Delta R / R$  を, BBO 結晶により中心波長 400 nm へ変換したプローブ (測定) 光により測定した。ポンプ光の測定試料表面におけるスポット径は 300  $\mu\text{m}$ , エネルギー密度は 0.7 mJ/cm<sup>2</sup> とした。また, 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は 360 mT を膜面法線から 83° 傾けて印加した。本ポンプ・プローブ測定システムにおいてポンプ光を照射せずに測定した, 各試料の室温における磁気光学 Kerr ヒステリシスループを図 5-10 に示す。

ここで, 本測定系における超短パルス光照射による加熱・減磁過程と歳差運動の励起過程を考える。外部磁界  $H_{\text{ext}}$ , 垂直磁気異方性磁界  $H_a$ , 自己減磁界 (反磁界)  $H_d$  の合成ベクトルである実効磁界  $H_{\text{eff}}$  は, 超短パルス光照射により誘起された  $H_a$  の変化及び減磁による  $H_d$  の減少により, ピコ秒オーダーの極短時間で準安定状態  $H'_{\text{eff}}$  となると考えられる<sup>5-30), 5-31)</sup>。その後, ~ns の時間領域において磁化は徐々に放熱により回復しながら,  $H'_{\text{eff}}$  の周りを歳差運動する (第3章図 3-9 参照)。

本システムにより測定した Sample I~III の各試料の Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$  及び

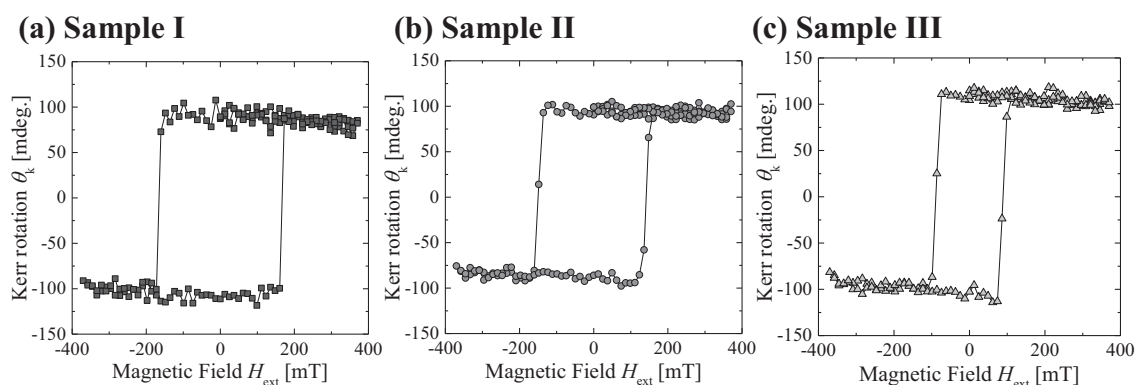


図 5-10 ポンプ・プローブ測定条件にて測定した各試料の磁気光学 Kerr ヒステリシスループ (磁場印加角度  $\theta_H = 83^\circ$ )

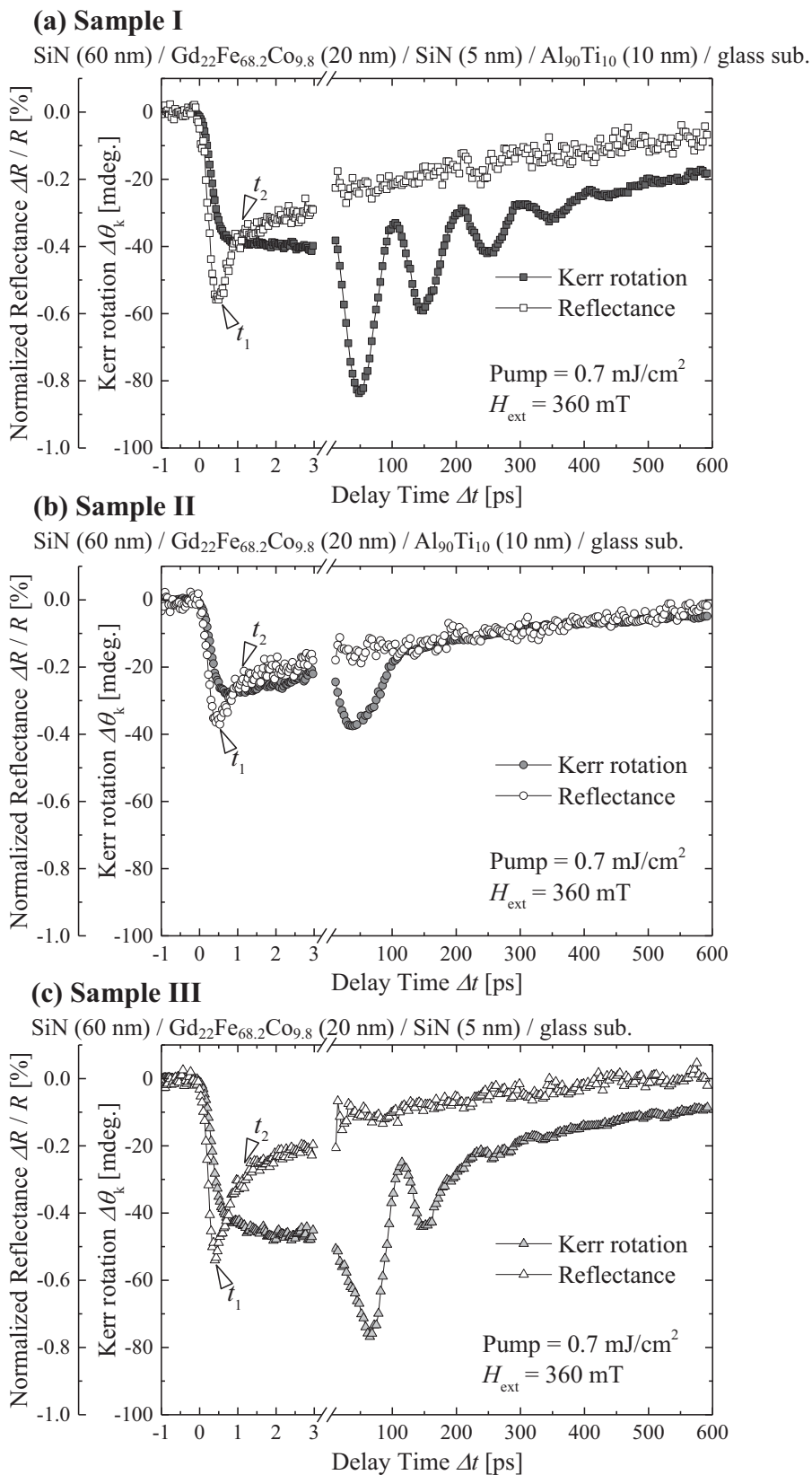


図 5-11 Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$  ・ 反射率変化率  $\Delta R / R$  の時間発展の試料層構成依存性

反射率変化率  $\Delta R / R$  の時間発展を図 5-11 に示す。いずれの層構成の試料においても、図 5-8 の結果と同様、ポンプ光の試料表面到達 ( $\Delta t = 0$ ) の後、 $\Delta t < 1$  ps の時間領域における  $\Delta R / R$  の急峻な変化及びそれに続く  $\Delta\theta_k$  のステップ状の変化と、その後数 100 ps に及ぶ歳差運動と重畳した熱拡散・磁化回復過程の、大きく時間スケールの異なる 2 領域に明確に区分することが出来る。

電子温度上昇に起因する反射率の変化<sup>5-24)</sup>は、図 5-11 中の  $t_1$  ( $\Delta t \sim 0.5$  ps) でいずれの試料においても最大となり、その後の回復の傾きが図中  $t_2$  ( $\Delta t \sim 1.1$  ps) で変化していることが確認できる。これは、約 0.5 ps で電子温度上昇が最大となり、その後約 1.1 ps で電子温度と格子温度が概ね平衡状態に達していることを意味している<sup>5-31)</sup>。

これに対し、ポンプ光の試料表面到達後 $\sim$ ps の時間領域における初期のステップ状の  $\Delta\theta_k$  の変化は、上記電子系-格子系平衡化の時間スケール ( $\Delta t \sim t_2$ ) よりも短い時間スケールで生じていることが確認できる。このステップ状減磁過程について、磁気光学 Kerr 効果の測定信号を規格化した結果を図 5-12 に示す。この減磁過程について時定数を two-exponential フィッティングにより求めたところ、

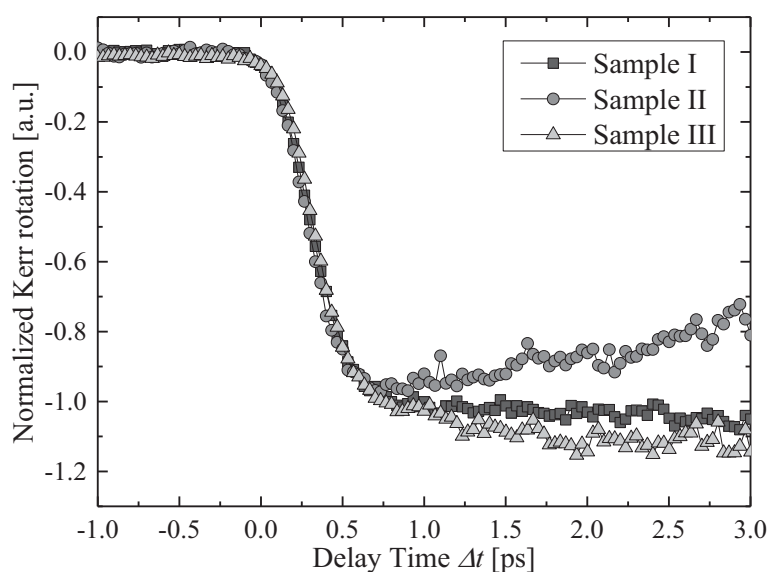


図 5-12 初期ステップ状減磁過程の試料層構成依存性

いずれの場合も約 100 fs で概ね一致した。このように、超短パルス光照射後サブ ps の時間領域で生じる減磁過程の時定数は層構成によらず概ね一致することから、磁性層の材料種により概ね決定されているといえる。

ここで、図 5-13 に (a) 全光ポンプ・プローブ法による磁気光学 Kerr 効果の旋光角 ( $\Delta\theta_k$ ) と (b) X 線円二色性 (XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism) による元素識別計測結果<sup>5-32)</sup>の比較を示す。なお、図 5-13 (b) の XMCD 計測結果はドイツ BESSY II の I. Radu らが報告した結果である。XMCD 元素識別計測結

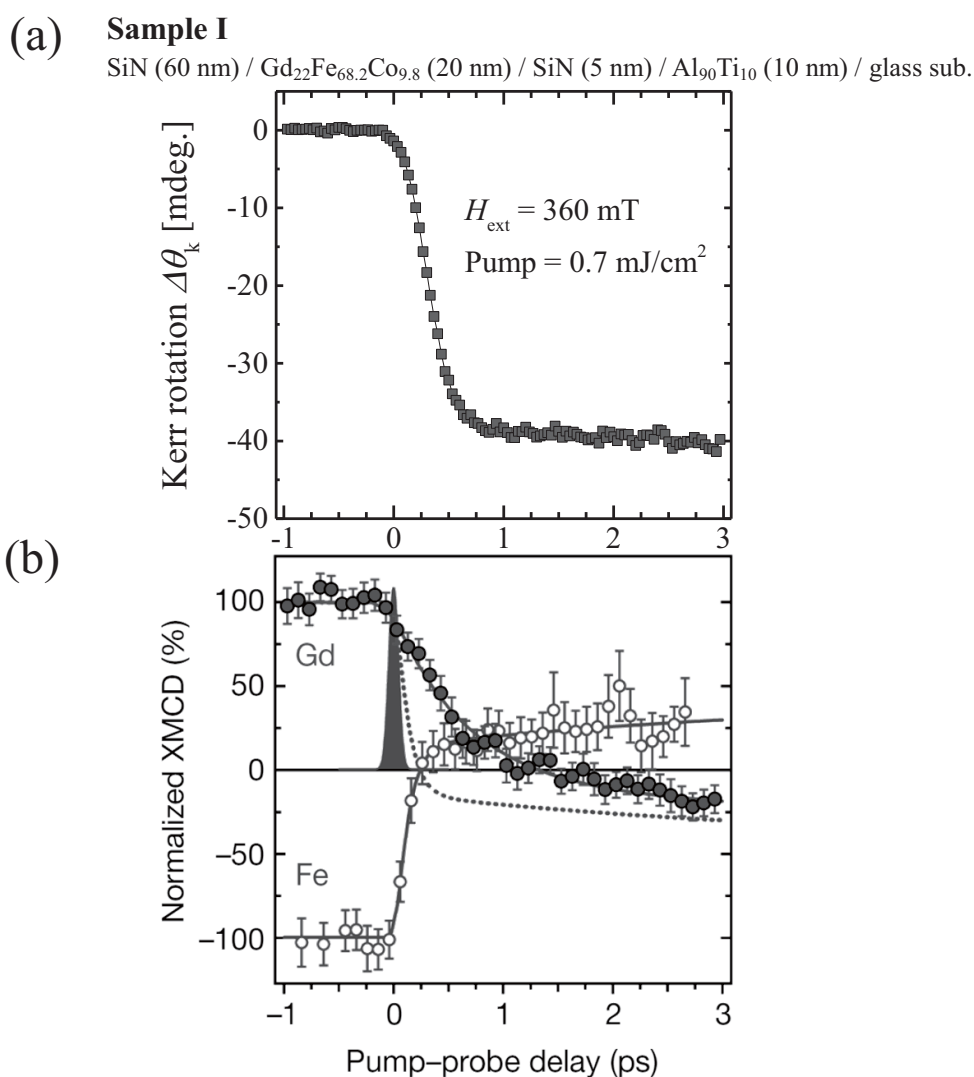


図 5-13 (a) 可視光での時分解 Kerr 測定結果と (b) X 線円二色性 (XMCD) による GdFeCo 薄膜の元素識別計測結果<sup>5-32)</sup>の比較

果における Fe の減磁の時定数は  $\tau_{\text{Fe}} = 100 \pm 25$  fs, Gd の減磁の時定数は  $\tau_{\text{Gd}} = 430 \pm 100$  fs であり, 磁気光学 Kerr 効果による測定結果と XMCD 計測における Fe の元素識別計測結果はほぼ一致する。これら検討より, 全光ポンプ・プローブ計測による  $\Delta\theta_k$  の測定結果が遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  に対応しており, 希土類である Gd 磁化の情報はいらないことを確認できるとともに, Gd 磁化も  $M_{\text{TM}}$  より遅れるものの,  $\Delta t \sim 3$  ps 程度で減磁が概ね完了することを示している。

ここで, 超短パルス光による励起後の磁化の減磁量 (以下,  $L_{\text{demag}}$  と定義する) について議論を行う。図 5-14 に示すように減磁過程における  $\Delta\theta_k$  の変化量は試料の層構成により異なっており, ポンプ・プローブ法による測定結果の  $\Delta\theta_k$  と同測定条件における磁気光学 Kerr ヒステリシスループ (図 5-10) から  $L_{\text{demag}}$  を求めた。同じエネルギー密度 ( $0.7 \text{ mJ/cm}^2$ ) のポンプ光照射による初期レベルからの変化量 (減磁量)  $L_{\text{demag}}$  はそれぞれ, Sample I: 約 35 %, Sample II: 約 28 %, Sample III: 約 39 %であった。図 5-11 のポンプ・プローブ計測条件において中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs のレーザーに対する各測定試料の光学吸収率を測定したところ, Sample I: 約 75 %, Sample II: 約 70 %, Sample III: 約 63 %であった。導電性を有する  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  放熱層が GdFeCo 磁性層に隣接した層構成である Sample II

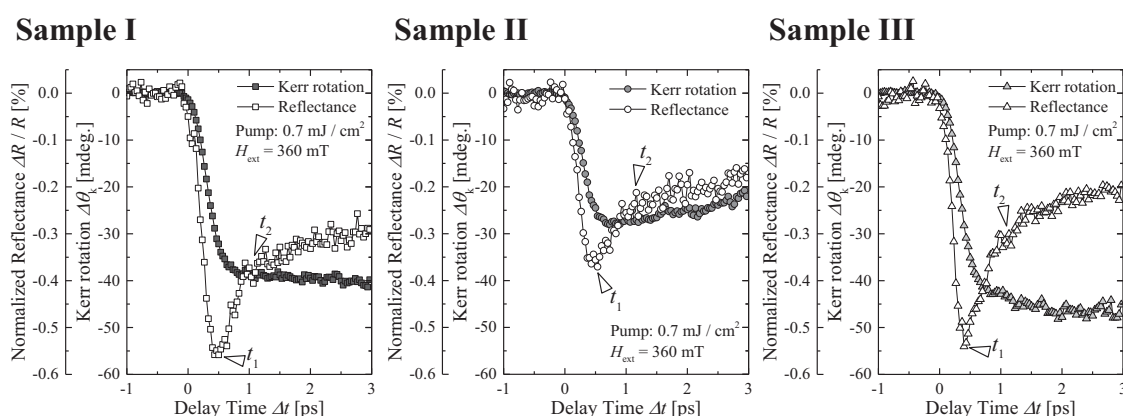


図 5-14 超短パルス光照射による GdFeCo 薄膜の超高速減磁過程の試料層構成依存性

は、磁性層のみである Sample III と比較して、試料全体でのポンプ光からのエネルギー吸収が多いにも関わらず  $L_{\text{demag}}$  は小さくなっている。また、GdFeCo 磁性層と Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 放熱層の間に非導電性の SiN 中間層を 5 nm 挿入した Sample I においては、ポンプ光からのエネルギー吸収が Sample II と同等であるにも関わらず、 $L_{\text{demag}}$  は Sample III と同程度であることが確認できる。上述のようにこの初期のステップ状減磁過程は電子系と格子系が概ね平衡化する  $\Delta t = t_2$  よりも短い時間領域の現象であるが、各試料における  $L_{\text{demag}}$  は GdFeCo 磁性層と Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 放熱層からなる連続した金属層の総厚で概ね決定されている。これら結果は、GdFeCo 薄膜において超短パルス光照射後サブ ps で生じる  $M_{\text{TM}}$  の減磁が主に電子温度上昇によって引き起こされ、GdFeCo 磁性層と Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 放熱層からなる隣接した金属層間での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意味している。そして、磁性層と放熱層の間に非導電性の SiN 中間層を挿入することにより、層間の電子温度平衡化が抑制されたと考えられる。

一方、電子温度・格子温度が概ね平衡化した後の  $\Delta t > t_2$  の領域では、層構成依存の、格子系の熱拡散による影響が大きく現れる。 $t_2 < \Delta t < \text{数 } 100 \text{ ps}$  の領域では、磁気光学 Kerr 効果の信号は LLG 方程式<sup>5-33), 5-34)</sup>の描像により表される歳差運動を伴いつつ、層構成に依存した熱拡散過程により放熱され、初期状態へ向かって回復する。このとき、図 5-11 (a) における歳差運動周波数  $f$  は  $\sim 9.9 \text{ GHz}$  (1 周期  $\sim 101 \text{ ps}$ )、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は  $\sim 0.11$  であった。フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$ 、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は、第 4 章でも述べたように温度に対し強い依存性<sup>5-35)</sup>を有しており、各試料における歳差運動挙動の差異は、層構成の差異による温度状態の違いに起因していると考えられる。このことを明確化するため、他の 2 つの試料の測定結果と比較して歳差運動の挙動が特に異なる Sample II について、ポンプ光のエネルギー密度を 0.7

$\text{mJ}/\text{cm}^2$  から  $1.4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  へ上げたときの  $\Delta\theta_k$  及び  $\Delta R/R$  の時間発展を測定した。結果を図 5-15 に示す。ポンプ光エネルギー密度  $1.4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  の条件では、ポンプ光の試料表面到達からサブ ps の時間領域において、 $0.7 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  の条件と比較して、電子温度上昇に伴う  $\Delta R/R$  の変化、及び減磁に伴う  $\Delta\theta_k$  の変化が共に増加していることを確認できる。そして、ポンプ光到達から数 100 ps の領域での歳差運動による減衰振動が、図 5-11 (a) Sample I 及び (c) Sample III の測定結果 (ポン

### Sample II

SiN (60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (20 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub.

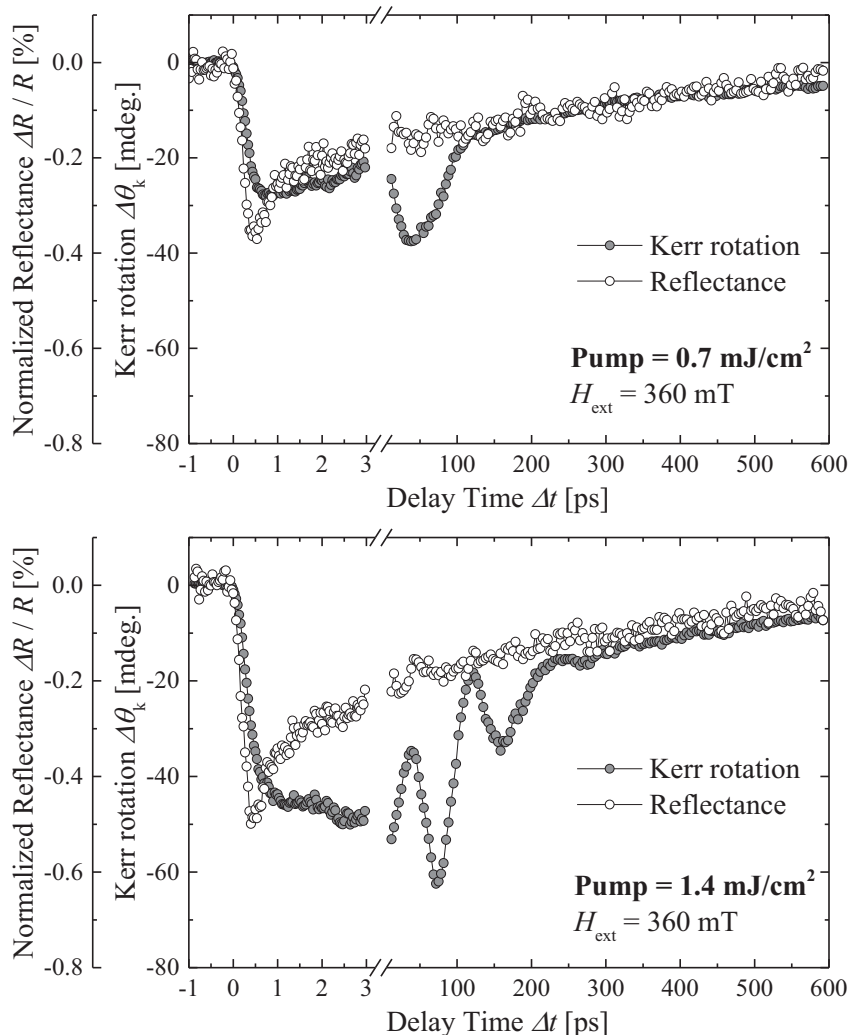


図 5-15 Sample II における Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$  ・ 反射率変化率  $\Delta R/R$  の時間発展の励起光強度依存性 (図 5-11 と同条件で計測)

プ光エネルギー密度  $0.7 \text{ mJ/cm}^2$ ) と同様、明確に現れることを確認した。これより、各試料の層構成の違いによる歳差運動挙動の差異が、主にポンプ光照射による磁性層の背景温度上昇の差に起因していることを明確化した。

ここまでの測定結果に基づく考察を裏付けるため、Sample I と同じ下地層の構成としつつ GdFeCo 磁性層を  $30 \text{ nm}$  厚とした Sample IV: SiN ( $60 \text{ nm}$ ) /  $\text{Gd}_{22}\text{Fe}_{68.2}\text{Co}_{9.8}$  ( $30 \text{ nm}$ ) / SiN ( $5 \text{ nm}$ ) /  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  ( $10 \text{ nm}$ ) / glass sub. を作製し、同様の条件にて時分解計測を行った。測定結果を図 5-16 に示す。ポンプ光の試料表面におけるエネルギー密度が  $0.7 \text{ mJ/cm}^2$  のとき、減磁量  $L_{\text{demag}}$  は  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  放熱層と  $20 \text{ nm}$  厚 GdFeCo 磁性層が隣接した Sample II と同程度であり、Sample I 及び III の約  $2/3$  となっていることが確認できる。また、ポンプ光エネルギー密度  $1.4 \text{ mJ}$

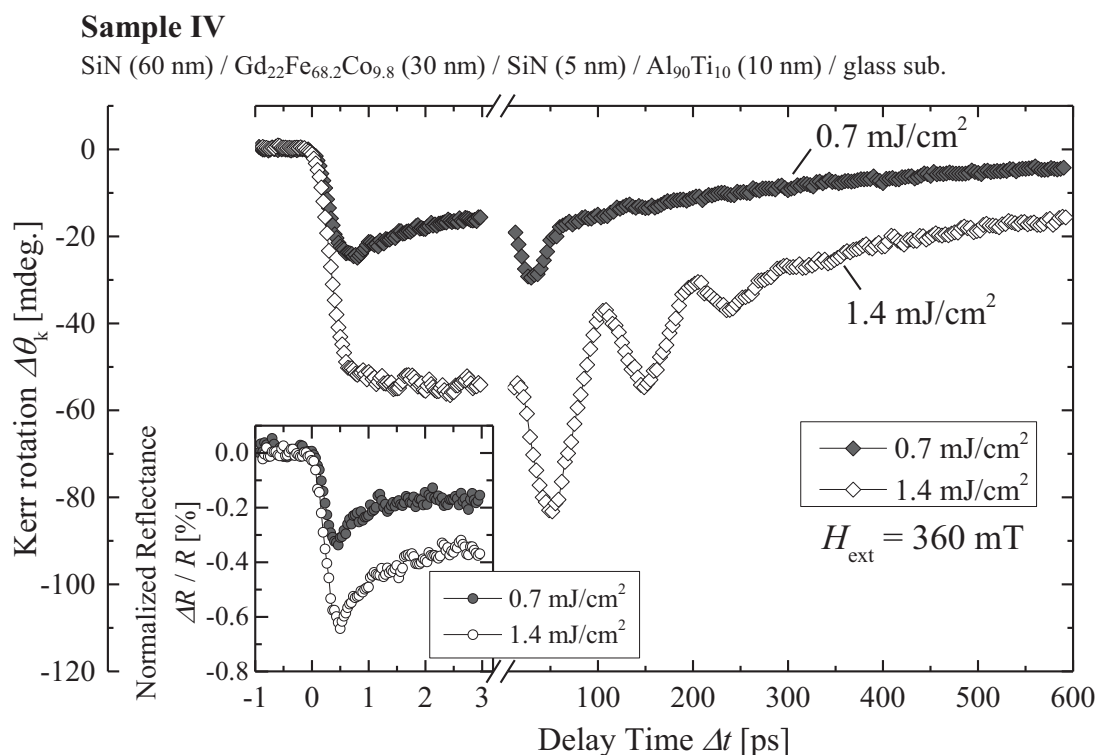


図 5-16  $\text{Gd}_{22}\text{Fe}_{68.2}\text{Co}_{9.8}$  ( $30 \text{ nm}$ ) 試料における磁気光学 Kerr 回転角変化  $\Delta\theta_k$  及び反射率変化率  $\Delta R/R$  の 励起光強度依存性 (図 5-11 と同条件で計測)



$/\text{cm}^2$  の条件においては, Sample I 及び III における  $0.7 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  の条件及び Sample II における  $1.4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  の条件と減磁量  $L_{\text{demag}}$  が同程度となり, これら条件と同様に歳差運動による減衰振動成分が明確に確認できる。以上より, GdFeCo 薄膜においてパルス幅 90 fs (半値全幅) の超短パルス光照射後サブ ps で生じる  $M_{\text{TM}}$  の減磁が主に電子系-格子系非平衡下での電子温度上昇によって引き起こされ, 磁性層及び磁性層と隣接した金属層の総厚によって減磁量  $L_{\text{demag}}$  が概ね決定されることが明らかとなった。

最後に, 高強度超短パルス光の照射に起因した強い非平衡過程を経て一般的に考えられている加熱状態に至り, その温度と対応した熱磁気特性を利用可能となるまでに要する時間スケールを明らかとするため, LLG 方程式の描像で説明可能なコレクティブモード (集団スピンモード) の歳差運動として扱えるようになるまでに要する時間スケールを, 実験結果から実効的に見積もることを検討した。第 3 章でも述べた様に, 歳差運動周波数  $f$  は実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  と実効磁界  $H_{\text{eff}}$  の積に比例する。そのため, ポンプ光試料表面到達後, 磁気光学 Kerr 回転角  $\Delta\theta_{\text{k}}$  の応答が外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  に対し依存性を示し始める時間を明らかとすることで, 上記検討が可能となると考えられる。図 5-17 に, Sample I における  $\Delta\theta_{\text{k}}$  の時間発展の, 外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  依存性を示す。初期状態における磁化の傾きが  $H_{\text{ext}}$  の大きさにより異なるため, 縦軸は初期の減磁過程における  $\Delta\theta_{\text{k}}$  の変化の大きさにより規格化を行っている。結果, ポンプ光の試料表面到達からサブ ps の時間域で生じているステップ状の初期減磁過程においては,  $\Delta\theta_{\text{k}}$  の応答は  $H_{\text{ext}}$  に対する依存性が確認できない。それに対し, 遅くとも  $\Delta t \sim 6 \text{ ps}$  以降においては,  $H_{\text{ext}}$  に対し明確に依存性を示すことを確認した。これより, 超短パルス光照射から約 6 ps より後の時間領域では, コレクティブモードの歳差運動として扱うことが可能である。このことは, 遅くとも  $\Delta t \sim 6 \text{ ps}$  以降の時間領域では,

**Sample I**

SiN (60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub.

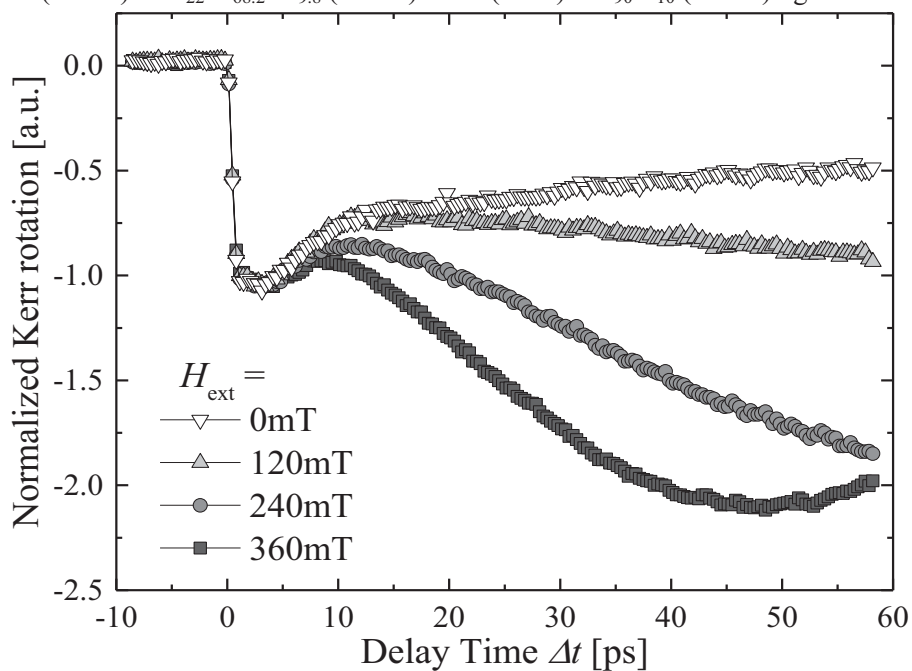


図 5-17 Sample I における磁気光学 Kerr 効果の時間発展の外部印加磁界依存性 (図 5-11 と同条件で計測)

強い非平衡状態を経て各種磁気特性が温度状態と対応する、一般的に考えられている“加熱”状態へ移行できることを意味している。すなわち、この時間スケール以降においては、超短パルス光照射による極短時間加熱で、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ている。

## 5.6. まとめ

本章では、電子系と格子系に対する応答が異なることが予測される、下地層の構成の異なるフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜を対象に、パルス幅 90 fs (半値全幅) の超短パルス光照射による極短時間加熱過程について解析検討を行った。結果、電子系-格子系の温度が非平衡状態にある~ps の時間領域においても、電子温度上昇に伴って減磁が引き起こされることを明らかとした。また、超短パルス光の照射から~6 ps 以降の時間領域では、強い非平衡状態を経て磁化が一般的に考えられている加熱状態へ移行でき、これ以降の時間領域においては熱磁気特性を利用可能となることを実験的に明らかとした。

## 参考文献

- 5-1) J. J. M. Ruigrok, R. Coehoom, S. R. Cumpson, and H. W. Kesteren: *J. Appl. Phys.* **87**, 5398 (2000).
- 5-2) H. N. Bertram, H. Zhou, and R. Gustafson: *IEEE Trans. Magn.* **34**, 1845 (1998).
- 5-3) S. H. Charap, P.-L. Lu, and Y. He: *IEEE Trans. Magn.* **33**, 978 (1997).
- 5-4) D. Weller and A. Moser: *IEEE Trans. Magn.* **35**, 4423 (1999).
- 5-5) D. Weller, A. Moser, L. Folks, M. E. Best, W. Lee, M. F. Toney, M. Schwickert, J. U. Thiele, and M. F. Doerner: *IEEE Trans. Magn.* **36**, 10 (2000).
- 5-6) R. D. Grober, R. J. Schoelkopf, and D. E. Prober: *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1354 (1997).
- 5-7) K. Nakagawa, J. Kim, A. Itoh: *J. Appl. Phys.* **101**, 09H504 (2007).
- 5-8) M. Mansuripur, G. A. N. Connell, and J. W. Goodman: *Appl. Opt.*, **21**, 1106 (1982).

- 5-9) M. Mansuripur and G. A. N. Connell: *J. Appl. Phys.* **54**, 4794 (1983).
- 5-10) 大藤美和: 平成 15 年度 日本大学大学院理工学研究科 修士論文 (2004).
- 5-11) C. A. Paddock and G. L. Eesley: *J. Appl. Phys.* **60**, 285 (1986).
- 5-12) B. M. Clemens, G. L. Eesley, and C. A. Paddock: *Phys. Rev. B* **37**, 1085 (1988).
- 5-13) 国立天文台編 「理科年表 平成 19 年 第 80 冊」丸善 (2006).
- 5-14) 柴田浩幸, 太田弘道, 宮下正巳, 野口敬員, 佐藤俊一, 早稲田嘉夫: 東北大学多元物質科学研究所素材工学研究彙報 **58** (1/2), 7 (2003).
- 5-15) S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man: *Sov. Phys. JETP* **39**, 375 (1984).
- 5-16) W. M. G. Ibrahim, H. E. Elsayed-Ali, C. E. Bonner Jr., M. Shinn: *International Journal of Heat and Mass Transfer* **47**, 2261 (2004).
- 5-17) E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot: *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
- 5-18) B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann: *Nature Mater.* **9**, 259 (2010).
- 5-19) E. Beaurepaire, J. C. Merle, A. Daunois, and J. Y. Bigot: *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
- 5-20) M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, W. J. M. de Jonge, B. Koopmans, and R. Coehoorn, *J. Phys. Cond. Matter.* **17**, 6823 (2005).
- 5-21) J. Y. Bigot, M. Vomir, and E. Beaurepaire: *Nature Phys.* **5**, 515 (2009).
- 5-22) A. Melnikov, H. Prima-Garcia, M. Lisowski, T. Gießel, R. Webber, R. Schmidt, C. Gahl, N. M. Bulgakova, U. Bovensiepen, and M. Weinelt: *Phys. Rev. Lett.* **100**, 107202 (2008).
- 5-23) M. Wietstruk, A. Melnikov, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, M. Sultan, C. Gahl,

- M. Weinelt, H. A. Dürr, and U. Bovensiepen: *Phys. Rev. Lett.* **106**, 127401 (2011).
- 5-24) J. Hohlfeld, Th. Gerrits, M. Bilderbeek, Th. Rasing, H. Awano, and N. Ohta: *Phys. Rev. B* **65**, 012413 (2001).
- 5-25) T. Katayama and K. Hasegawa: *Proc. 4th Int. Conf. Rapidly Quenched Metals, Sendai*, 915 (1981).
- 5-26) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (S1), 273 (1987).
- 5-27) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).
- 5-28) H. Regensburger, R. Vollmer, and J. Kirschner: *Phys. Rev. B* **61**, 14716 (2000).
- 5-29) G. P. Zhang, W. Hüber, G. Lefkidis, Y. Bai, and T. F. George: *Nature Phys.* **5**, 499 (2009).
- 5-30) M. van. Kampen, C. Jozsa, J. T. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W. J. M. de Jonge, and B. Koopmans: *Phys. Rev. Lett.* **88**, 227201 (2002).
- 5-31) M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J. Y. Bigot: *Phys. Rev. Lett.* **94**, 237601 (2005).
- 5-32) I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A. V. Kimel: *Nature* **472**, 205 (2011).
- 5-33) L. D. Landau and E. M. Lifshitz: *Phys. Z. Sowjet.* **8**, 153 (1935).
- 5-34) T. L. Gilbert: *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1955).
- 5-35) C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Phys. Rev. B* **73**, 220402(R) (2006).

## 第6章 フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における

### 超短パルス光誘起高速歳差スイッチング

#### 6.1. はじめに

第4章では、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化動特性が温度・組成に対し強く依存し、副格子磁化の有する角運動量が打ち消し合い正味の角運動量  $A_{\text{net}}$  が消失する角運動量補償温度 ( $T_{\text{CA}}$ )・組成 ( $C_A$ ) の近傍にて Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  が著しい増大傾向を示すことを、実験的に明らかとした。そして第5章では、フェリ磁性薄膜の角運動量補償温度近傍における磁化動特性を積極的に利用し高速磁化制御を実現するための手法として、超短パルス照射による極短時間加熱に着目し、電子系-格子系の過渡的エネルギー非平衡状態における電子温度及び格子温度の上昇と磁化の応答について対応を検討した。

これら検討を踏まえ本章では、超短パルス光照射によってフェリ磁性薄膜を角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  近傍まで極短時間加熱し、動特性を含む熱磁気特性を極短時間で変化させ、実際に高速磁化制御が可能となることを、磁化反転過程の実時間領域直接計測によって実証する。しかし、第3章で述べたように、同じ現象を繰り返し励起・測定することが前提となるポンプ・プローブ法では、不可逆応答である磁化反転の過程は通常、測定不能である。そのため、レーザーの繰り返し周期と同期した、磁化状態の初期化プロセスを導入する必要がある。本章では、6.2 節にて超短パルス光照射によりフェリ磁性材料の磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  を越え角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  近傍へ到達する極短時間加熱を用いた磁化高速歳差スイッチング (歳差運動を伴った高速磁化反転) の励起原理と、その磁化反転過程をポンプ・プローブ法にて測定するための手法について述べ、6.3 節にてその実証を行う。

## 6.2. 磁化歳差スイッチングの励起原理と

### ポンプ・プローブ法による反転過程の測定法

本研究で測定に用いている全光型のポンプ・プローブ法は、第3章において述べたように、現象を励起するポンプ光と測定を行うプローブ光の試料表面への到達遅延時間を制御することにより、ポンプ光照射にて励起される高速な現象を実時間領域で計測するための手法である。しかし本測定法は、パルス光源の繰り返し周期以内にポンプ光照射によって生じた現象が収束し、初期状態へ変化が回復することが前提となるため、一般的には磁化反転のように不可逆な応答の過程の計測に用いることは、不可能である。不可逆応答である磁化反転の過程をポンプ・プローブ法で測定するためには、光源の周期と同期した磁化状態の初期化プロセスを導入する必要がある。また、歳差スイッチング (歳差運動を伴った高速磁化反転) を励起するためには、歳差運動周期より短い時間で磁化に対し反転トルクを加える必要がある。しかし、高保磁力媒体の磁化が反転可能な大きさのパルス外部磁界を、このように短い周期で電磁石にて印加することは、コイルのインダクタンスから決定される応答の時定数を考慮すると、困難であるといえる。そこで、上記歳差スイッチングの励起及び初期化のプロセスに、フェリ磁性材料の磁化補償現象を用いることを検討した。以下、超短パルス光照射によるフェリ磁性薄膜の磁化歳差スイッチングの励起原理と、励起した磁化反転過程のポンプ・プローブ法による計測原理<sup>6-1)</sup>について述べる。

測定試料には、磁化補償温度  $T_{CM}$  が測定温度より高温域に存在する組成のフェリ磁性薄膜を用いる。ここでは、室温において測定を行うことを想定しており、室温における保磁力  $H_c^{room}$  よりも高い DC 外部磁界  $H_{ext}$  を印加し、磁化を一方向に初磁化する。DC 外部磁界  $H_{ext}$  は測定中、印加したままとする。ここで、

ポンプ (励起) 光を試料表面に照射し, 測定空間領域 (プローブ光のスポット内) の媒体温度が  $T_{CM}$  より高温となるよう, 極短時間加熱を行う。すると, 第2章で述べた希土類 (RE) 遷移金属 (TM) フェリ磁性体の磁化温度特性によって, 希土類磁化  $M_{RE} >$  遷移金属磁化  $M_{TM}$  (RE-rich) の状態から  $M_{TM} > M_{RE}$  (TM-rich) の状態へと変化する。つまり,  $M_{RE}$  と  $M_{TM}$  の差分である正味磁化  $M_{net}$  は,  $T_{CM}$  より低温側では  $M_{RE}$  と同方向であるが,  $T_{CM}$  を越える極短時間加熱によって短時間で  $M_{TM}$  と同方向になる。第5章での検討より, パルス幅 90 fs (半値全幅) の超短パルス光照射極短時間加熱による減磁過程において, フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の  $M_{TM}$  は主に電子温度上昇と対応し, 電子系-格子系のエネルギー非平衡下においても  $\sim$ ps の時間スケールで応答可能であることを実験的に明らかとしている。また, ドイツ BESSY II の I. Radu らの報告<sup>6-2)</sup>より, 高強度超短パルス光照射による磁化反転の励起過程では,  $M_{RE}$  の応答は  $M_{TM}$  に対し遅れが生じるが,  $\sim$ 3 ps 程度で  $M_{RE}$  の減磁も完了することが報告されている。これらより, 印加し続けている DC 外部磁界  $H_{ext}$  と  $M_{net}$  の方向関係を, 歳差運動の周期に対し十分高速なピコ秒オーダーの時間領域で逆向きとすることが可能であると考えられる。そして, 加熱後の保磁力  $H_c^{heat}$  が  $H_{ext}$  より小さいときには,  $H_{ext}$  によって歳差運動を伴った磁化反転が励起される。図 6-1 に, 上記原理に基づく磁化歳差スイッチ

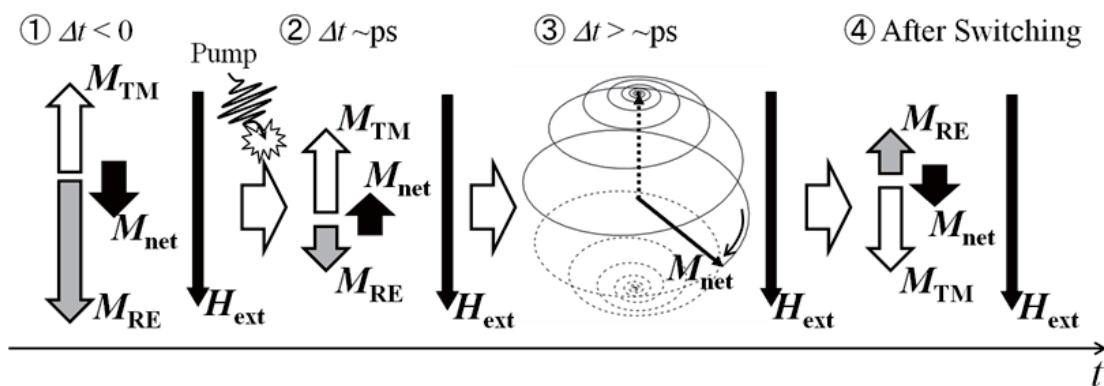


図 6-1 磁化補償現象を利用した, 超短パルス光照射極短時間加熱による磁化歳差スイッチングの励起過程の模式図



チングの励起過程を、副格子磁化  $M_{RE}$ ,  $M_{TM}$  及び正味磁化  $M_{net}$  と DC 外部磁界  $H_{ext}$  の対応とあわせ、模式的に示す。

放熱により試料の温度が低下し  $T_{CM}$  を下回ると、初期の  $M_{RE} > M_{TM}$  の関係に戻る。外部磁界  $H_{ext}$  は室温の保磁力  $H_c^{room}$  よりも高いため、 $H_{ext}$  によって初期の方向に再度磁化反転し、初期化される。つまり、本手法によって磁化反転を繰り返し励起し、その過程を測定することが可能となる。ただし、本磁化反転励起条件では、ポンプ光照射後の磁化状態は最終的に初期状態へ戻るため、反転した磁区を保持することは出来ない。

上記原理により励起した歳差スイッチングを磁気記録へ応用をするためには、 $H_{ext}$  を室温における保磁力  $H_c^{room}$  よりも低く設定し、反転磁区を保持する必要がある。図 6-2 に、 $H_{ext} > H_c^{room}$  及び  $H_{ext} < H_c^{room}$  の条件における、ポンプ光照射毎の過渡的磁化応答の模式図を示す。このように、DC 外部磁界  $H_{ext}$  が  $H_c^{room} > H_{ext} > H_c^{heat}$  となる条件では、初磁化後 1 回目のポンプ光照射で磁化反転し、その後

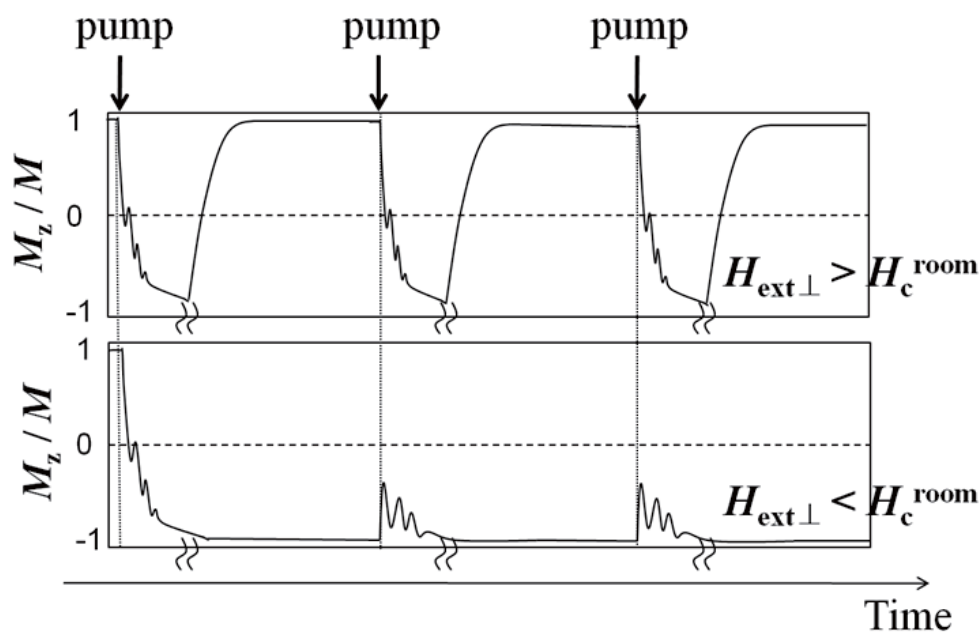


図 6-2 DC 外部印加磁界  $H_{ext}$  と保磁力  $H_c^{room}$  の大小関係とポンプ光照射毎の過渡的磁化応答の対応の模式図

に初期の磁化状態へと戻らない。そのため、同じ現象を繰り返し励起・測定する必要があるポンプ・プローブ法では、2回目以降のポンプ光照射による減磁と励起された磁化歳差運動のみを測定することになり、反転磁区は保持されるが、繰り返し磁化反転を励起できない。つまり、この条件においては、上記方法によって磁化反転の過程を測定することは不可能である。

### 6.3. フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における角運動量補償点

#### 利用超短パルス光誘起高速歳差スイッチング

前節では、フェリ磁性体の磁化補償現象を超短パルス光照射による極短時間加熱で利用した歳差スイッチングの励起原理を述べ、磁化反転の過程をポンプ・プローブ法によって実時間領域で計測する方法について述べた。本節では、上記手法を用いて歳差スイッチングを励起し、角運動量補償点近傍の高ダンピング特性を利用して磁化反転時間を短縮可能であることを実証する。

測定システムには、第3章において述べた全光ポンプ・プローブ法を用いる。現象を励起するポンプ光の中心波長は 800 nm とし、測定を行うプローブ光の中心波長は OPA (Optical Parametric Amplifier) を用いて 420 nm に変換し使用した。本研究において対象としたフェリ磁性 GdFeCo では、可視光域における磁気光学 Kerr 効果・Faraday は主に遷移金属磁化  $M_{TM}$  によるものである<sup>6-3)-6-5)</sup>ことは、第2章において述べた通りである。測定光源のパルス幅は 90 fs (半値全幅) であり、ポンプ光及びプローブ光の測定試料表面におけるスポット径はそれぞれ、200  $\mu\text{m}$ , 30  $\mu\text{m}$  に設定した。また、DC 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は測定試料の膜面法線から 70° 傾けて印加し、室温にて測定を行った。

次に、測定に用いた試料について述べる。測定試料は、マグネトロンスパッ

タ法により作製した SiN (60 nm) / Gd<sub>24.5</sub>Fe<sub>66.1</sub>Co<sub>9.4</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub.を用いた。本試料の磁化補償温度  $T_{CM}$  は約 345 K である。第4章で述べた磁化動特性の温度依存性より, 角運動量補償温度  $T_{CA}$  は磁化補償温度  $T_{CM}$  より約 50 K 高い温度域 ( $T \sim 400$  K 付近) に存在すると予測される。図 6-3 に本測定試料の層構成及び保磁力  $H_c$ —温度特性を示す。挿入図は, 磁化補償温度  $T_{CM}$  を境にした各温度域での正味磁化  $M_{net}$  と各副格子磁化の方向の関係である。

図 6-4 に, 上記条件において測定した過渡的磁化応答を示す。外部印加磁界  $H_{ext}$  は 420 mT とし, ポンプ光の試料表面におけるエネルギー密度は  $0.9 \text{ mJ/cm}^2$ ,  $2.1 \text{ mJ/cm}^2$ ,  $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  とした。測定結果の横軸はポンプ光の試料表面到達からの遅延時間  $\Delta t$  を表しており, 縦軸は Faraday 回転角の測定信号を膜面法線方向 ( $z$  軸方向) の磁化成分  $M_z$  で規格化したものである。いずれのポンプ光エネルギー密度においても, ポンプ光が試料表面へ到達 ( $\Delta t = 0$ ) した後, 極短時間加熱に起因した減磁が生じていることを確認できる。その後, ポンプ光エネルギー

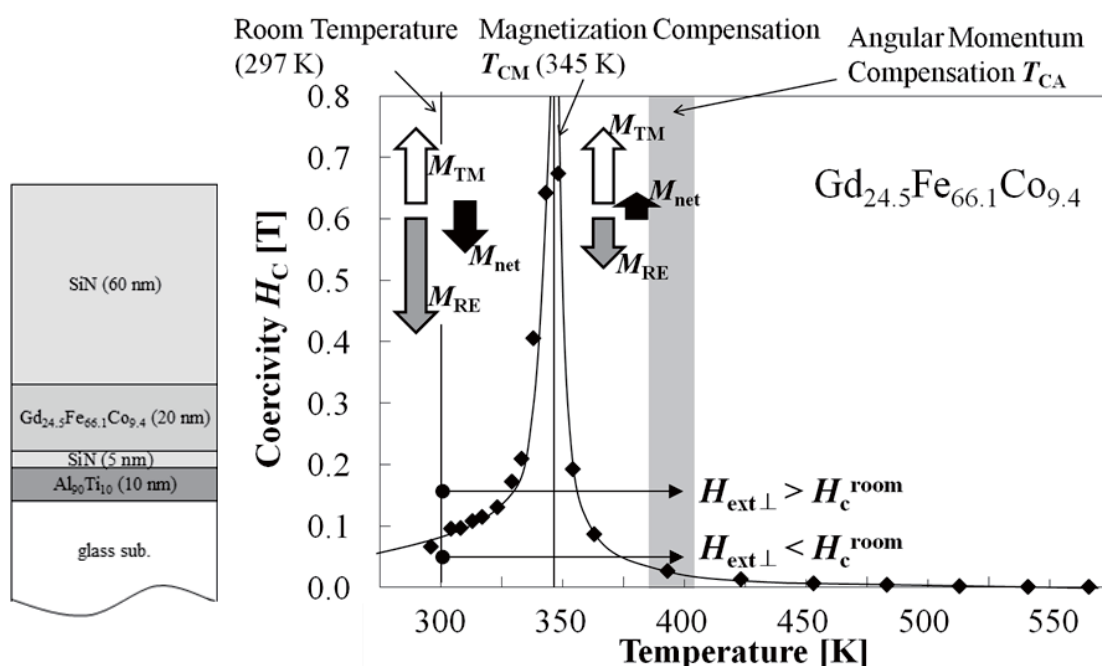


図 6-3 Gd<sub>24.5</sub>Fe<sub>66.1</sub>Co<sub>9.4</sub> 測定試料の層構成と保磁力  $H_c$ —温度特性

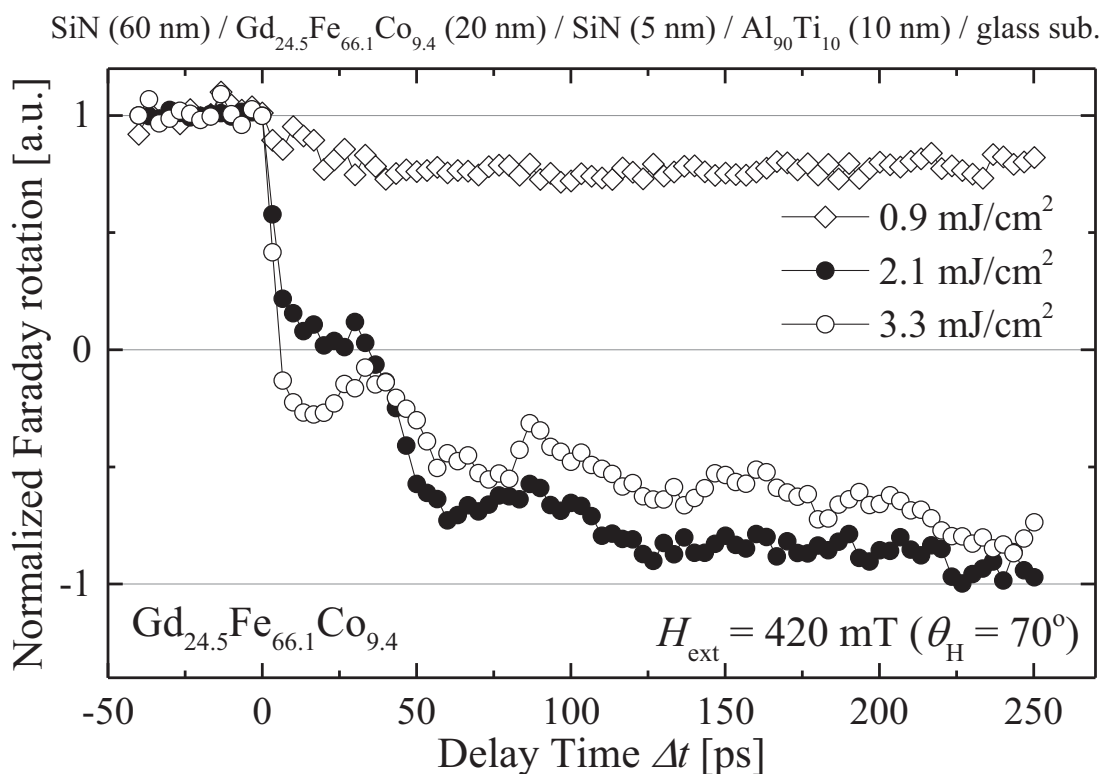


図 6-4 Gd<sub>24.5</sub>Fe<sub>66.1</sub>Co<sub>9.4</sub> (20 nm) 試料の室温における過渡的磁化反転過程のダイナミクス測定結果 (磁化補償温度  $T_{\text{CM}} = 345 \text{ K}$ , 外部印加磁界  $H_{\text{ext}} = 420 \text{ mT}$ )

密度  $0.9 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では減磁された磁化が初期の磁化方向へ回復しているが、 $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  及び  $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  の条件においては、測定信号が初期の磁化方向とは逆方向に収束していることが確認できる。これは、前節で述べた原理によって磁化反転を繰り返し励起・測定したものである。ポンプ光エネルギー密度  $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では、ポンプ光照射による極短時間加熱により遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  が約 30% 減磁されていると考えられ、歳差運動 1 周期目の  $\Delta t \sim 6 \text{ ps}$  程度で、磁化の z 軸方向成分  $M_z/M$  が 0 を越えることを確認した。このときの歳差運動周波数  $f$  は 1 周期目において約 30 GHz であり、第 4 章で示したように、これは GdFeCo の角運動量補償点近傍でなければ現れない高い周波数である。そして、数周期の高ダンピングな歳差運動の後、初期状態とは逆方向に収束している。この結果は、遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  と希土類磁化  $M_{\text{RE}}$  の各副格子磁化がともに減磁され、

正味磁化  $M_{\text{net}}$  と DC 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  の対応がこの時間スケールにおいて逆向きに変化していることを意味し、ドイツ BESSY II の I. Radu ら元素識別計測結果の報告<sup>6-2)</sup>とも一致する。また、超短パルス光照射によって極短時間加熱で熱磁気特性を利用可能となるまでの時間スケールを検討した前章の結果とも一致する。

このとき、十分に磁化反転が完了し安定的な状態に至るまでの時間を評価するため、 $M_z/M = -0.7$  に到達する時間を指標として用いると、約 100 ps であった。また、 $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では初期の減磁量が小さく、その後  $M_z/M = 0$  を越えるまでの時間も 30 ps 程度と  $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  の条件よりも要するが、 $M_z/M = -0.7$  へ到達する時間は 50 ps 程度と短い。これは、ポンプ光加熱による減磁が大きい場合には回復に時間を要すること、そして  $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  の条件の方が歳差運動を示す時間領域における温度状態が角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  に近いためと考えられる。 $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  の条件におけるポンプ光照射直後の遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  の減磁量は約 20% であると考えられ、磁気光学 Kerr 回転角  $\theta_k$ 、Faraday 回転角  $\theta_F$  の温度依存性との比較から温度上昇を見積もると室温+130 K 程度となる。本測定試料の磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  は室温+50 K 前後 ( $T \sim 345 \text{ K}$ ) であり、第4章4.3節で示した磁化動特性の温度依存性から、角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  は  $T_{\text{CM}} + 50 \text{ K}$  程度の  $T \sim 400 \text{ K}$  前後に存在すると考えられる。このことから、ポンプ光のエネルギー密度が  $2.1 \text{ mJ/cm}^2$  の条件において、歳差運動を示す時間領域での背景温度が  $T_{\text{CA}}$  近傍であると考えられる。

ここで、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  を変化させることで磁化反転の挙動がどのように変化するかを、単磁区モデルかつ一斉磁化回転の仮定のもと、LLG 方程式に基づくシミュレーションにて検討を行った。フェリ磁性体の正味磁化  $M_{\text{net}}$  は温度に対し変化が単調ではなく、厳密には各副格子磁化の時間変化を分子場近似等により見積もる必要がある。そのため、モデル簡略化のため超短パル

ス光照射による背景温度の変化は考えず，正味磁化  $M_{\text{net}}$  及び垂直磁気異方性エネルギー  $K_u$  を一定とした。また，第4章で示したようにフェリ磁性 GdFeCo では歳差運動周波数  $f$  と比例の関係にある実効磁気回転比  $\gamma_{\text{eff}}$  も温度依存性を有するが，モデル簡略化のため一定とした。パラメータには  $T_{\text{CM}}$  を越えた  $M_{\text{TM}} > M_{\text{RE}}$  の GdFeCo 薄膜における典型値として  $M_{\text{net}} = 100 \text{ emu / cc}$ ， $K_u = 5 \times 10^5 \text{ erg / cc}$ ， $\gamma_{\text{eff}} = 1.76 \times 10^7 \text{ rad / s / Oe}$  を用い，外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は x-z 平面上で z 軸より  $\theta_H = 70^\circ$  傾けて 4200 Oe 印加した。磁性薄膜は無限平面を仮定し，z 軸方向のみに自己減磁界  $H_d = 4\pi M_z$  及び異方性磁界  $H_a = 2K_u M_z / M_{\text{net}}^2$  を設定した。磁化の z 軸方向成分  $M_z$  の時間発展を図 6-5 に示す。結果より，ダンピング定数  $\alpha$  の増大に伴い  $M_z / M_{\text{net}} = 0$  を越えるまでに要する時間も増大するが，その後の歳差運動の収束は早くなることが確認でき， $\alpha = 0.3$  の条件では歳差運動が約 120 ps で概ね収束している。LLG シミュレーションによる反転過程の  $\alpha$  依存性の検討結果は，図 6-4 の測定結果とも傾向として一致するといえる。

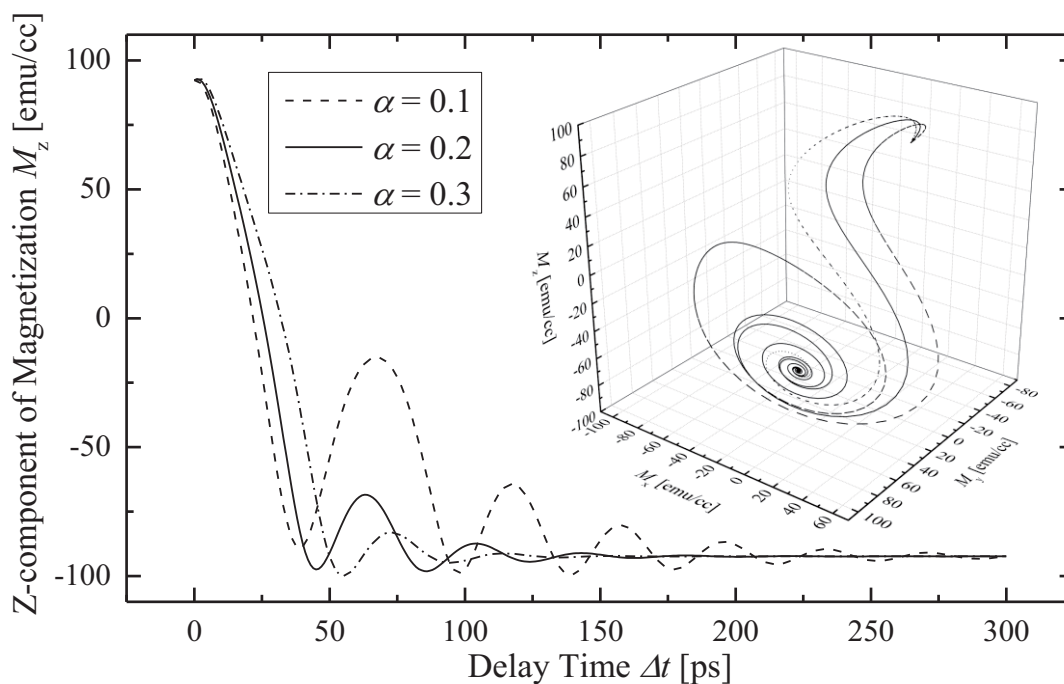


図 6-5 磁化反転過程の Gilbert ダンピング定数  $\alpha$  依存性の LLG 方程式に基づくシミュレーション結果

前節でも述べたように、上記方法で磁化反転させた磁区を保持するためには、室温における保磁力  $H_c^{\text{room}} > \text{外部印加磁界 } H_{\text{ext}} > \text{ポンプ光加熱後の保磁力 } H_c^{\text{heat}}$  とする必要がある。そこで、各 DC 磁界  $H_{\text{ext}}$  印加条件でポンプ光を照射した後の、最終的な磁化の状態を確認するため、ポンプ光到達遅延時間  $\Delta t < 0$  におけるヒステリシスループを計測した。ポンプ光エネルギー密度  $3.3 \text{ mJ/cm}^2$  の条件における結果を図 6-6 に示す。結果より、プローブ光スポット内の磁化が概ね、 $H_{\text{ext}} > 250 \text{ mT}$  の条件においてポンプ光照射毎に初磁化されていることがわかる。また、それより低い  $H_{\text{ext}}$  の印加範囲においては、磁化反転した後に初磁化されず、形成された磁区が保持されていることを確認した。

以上より、DC 外部磁界  $H_{\text{ext}}$  印加下において、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  を越え角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  近傍まで到達する極短時間加熱を超短パルス光照射により行うことで、従来の磁気記録と比較して高速な熱アシスト磁化歳差スイッチングが励起可能であることを実証した。

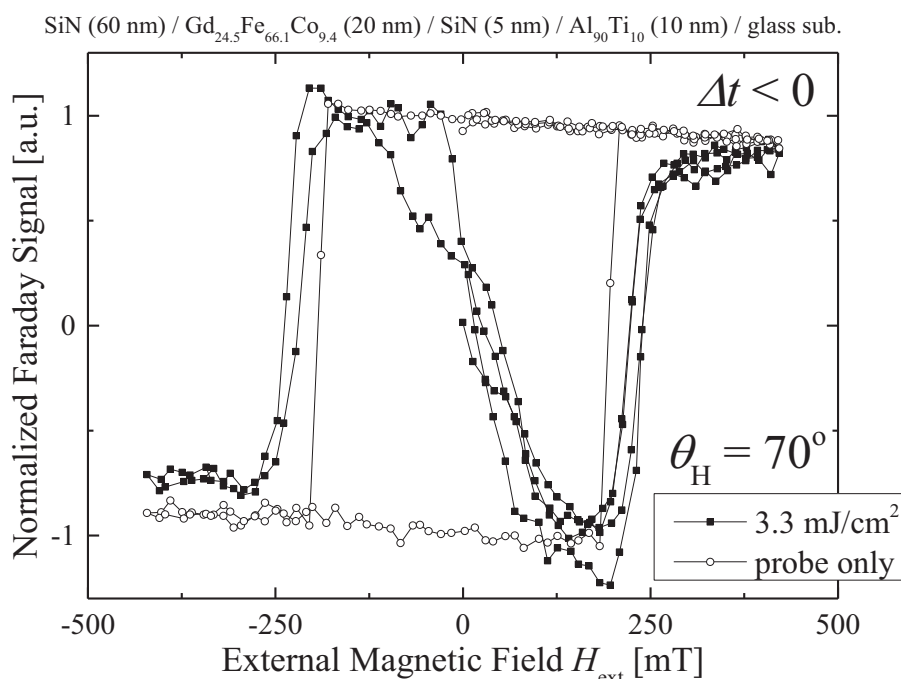


図 6-6 Gd<sub>24.5</sub>Fe<sub>66.1</sub>Co<sub>9.4</sub> (20 nm) 試料の室温におけるポンプ光照射後の最終磁化状態の DC 外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  依存性

## 6.4. まとめ

本章では、第5章で検討した超短パルス光照射による極短時間加熱を用いることで、第4章で示したフェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化動特性の温度依存性を利用でき、高速な磁化歳差スイッチングが励起可能であることを、フェリ磁性体の磁化補償現象を利用した全光ポンプ・プローブ法による磁化反転過程の時間分解測定により実証した。

## 参考文献

- 6-1) C. D. Stanciu, A. Tsukamoto, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Kirilyuk, A. Itoh, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217204 (2007).
- 6-2) I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A. V. Kimel: *Nature* **472**, 205 (2011).
- 6-3) T. Katayama and K. Hasegawa: *Proc. 4th Int. Conf. Rapidly Quenched Metals*, Sendai, 915 (1981).
- 6-4) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11**, S1, 273 (1987).
- 6-5) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).



## 第7章 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の

### エネルギー散逸過程と磁化ダイナミクス

#### 7.1. はじめに

ここまで、希土類 (RE) 遷移金属 (TM) アモルファス合金フェリ磁性材料である GdFeCo 薄膜を対象に、超短パルス光照射による高速熱アシスト磁化動特性制御の検討を行ってきた。第5章では GdFeCo 薄膜の超短パルス光照射による極短時間加熱・減磁過程について検討を行っており、上記検討を踏まえ第6章では、超短パルス光照射による極短時間加熱を行うことで、第4章で述べたのフェリ磁性 GdFeCo の磁化動特性の温度・組成依存性を利用した、超高速熱アシスト磁化歳差スイッチングが励起可能であることを実証した。

これら検討の結果、超短パルス光照射による極短時間加熱を利用したフェリ磁性媒体の超高速磁化制御、高速磁気記録の可能性を見出した。このような超短パルス光照射による極短時間加熱では、第5章でも述べたように電子系一格子系の温度に過渡的非平衡状態が生じる<sup>7-1)</sup>。このとき、GdFeCo の磁化の減磁は主に電子温度の上昇と対応<sup>7-2)</sup>しており、従来の熱磁気特性の検討をそのまま利用することはできない。極短時間の熱磁氣的応答を実デバイスへ応用するためには熱応答特性の制御性向上が求められ、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各層内・層間のエネルギー散逸過程の詳細な理解が不可欠である。また、上記超短パルス光照射による熱アシストという観点の他、スピン注入磁化反転 (Spin Transfer Torque Magnetization Switching)<sup>7-3)</sup>を利用した磁気抵抗ランダムアクセスメモリ (MRAM: Magnetoresistive Random Access Memory) やスピントルク発振器 (STO: Spin Torque Oscillator) などへの応用が期待される磁気トンネル接合 (MTJ: Magnetic Tunnel Junction) 素子等、各種スピン

トロニクスデバイスの研究・開発においても、単層の磁性薄膜試料と多層構造試料における磁化ダイナミクスの差異についての理解は重要な課題である。

本章では、超短パルス光照射による多層膜内の極短時間加熱ならびにエネルギー散逸過程と励起された歳差運動の挙動を検討するための手法として、全光ポンプ・プローブ法による磁化ダイナミクスの層分離計測法を提案する。本章において対象とする磁性薄膜は、磁気交換結合をしていない磁性多層膜構造を前提とする。磁気交換結合した磁性多層膜の磁化ダイナミクスについては、次の第8章で述べるものとする。そして、誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜に対し提案した層分離計測法を適用し、各磁性層の磁化ダイナミクス、そして熱磁気特性を介して各層の温度推移について検討を行った。

## 7.2. 極短時間加熱ならびに

### エネルギー散逸過程の層分離計測

本節では、磁性多層膜内における磁化ダイナミクスの、全光ポンプ・プローブ法による層分離計測について述べる。ポンプ・プローブ法による磁化ダイナミクスの計測については第3章で述べた通りであり、中心波長 800 nm、繰り返し周波数 1 kHz、パルス幅 90 fs の Ti: Sapphire パルスレーザーを光源として用いた。ポンプ光 (励起光) は BBO 結晶を用い中心波長 400 nm に変換して用い、試料を透過した中心波長 800 nm のプローブ光にて測定を行った。第5章で述べたように透過率変化率  $\Delta T / T$  は媒体の電子温度<sup>7-4)</sup>、Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  は磁化の時間発展をそれぞれ反映している。反射光による磁気光学 Kerr 効果を用いた場合、試料内深さ方向の位置関係によって測定信号への寄与に差が生じ、試料表面側の信号が強く表れるため、透過光の Faraday 効果を用いた。外部磁界  $H_{\text{ext}}$

は膜面法線より  $65^\circ$  傾けて印加する。また、ポンプ光のエネルギー密度は  $0.2 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  とし、室温にて測定を行った。図 7-1 に測定システムの概略図を示す。

測定試料は、マグネトロンスパッタ法にて作製した SiN (60 nm) / A 層:  $\text{Gd}_{27}\text{Fe}_{63.9}\text{Co}_{9.1}$  (10 nm) / SiN (5 nm) / B 層:  $\text{Gd}_{22}\text{Fe}_{68.2}\text{Co}_{9.8}$  (10 nm) / SiN (5 nm) /  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  (10 nm) / glass sub.を用いた。2つの磁性層 (A 層及び B 層) の間には、磁気交換結合及び電気伝導の分断<sup>7-2)</sup>を目的とし、5 nm 厚の SiN 誘電体層を挿入している。図 7-2 (a) に本試料の層構成を示す。また図 7-2 (b) に、上記ポンプ・プローブ測定条件にてポンプ光を試料へ照射せずに測定した、本試料の Faraday ヒステリシスループをそれぞれ示す。ヒステリシスループの図中に挿入した矢印は、各磁性層の正味磁化  $M_{\text{net}}$  の向きを表している。

第 2 章において述べたように、GdFeCo は重希土類である Gd と遷移金属である Fe, Co の磁化が反平行結合しており、可視光域における磁気光学 Kerr 効果・Faraday 効果は、主に遷移金属 FeCo の磁化  $M_{\text{TM}}$  に対応している<sup>7-5)-7-7)</sup>。そのため、磁気光学効果による  $M_{\text{TM}}$  の測定と VSM 等による正味磁化  $M_{\text{net}}$  の測定結果

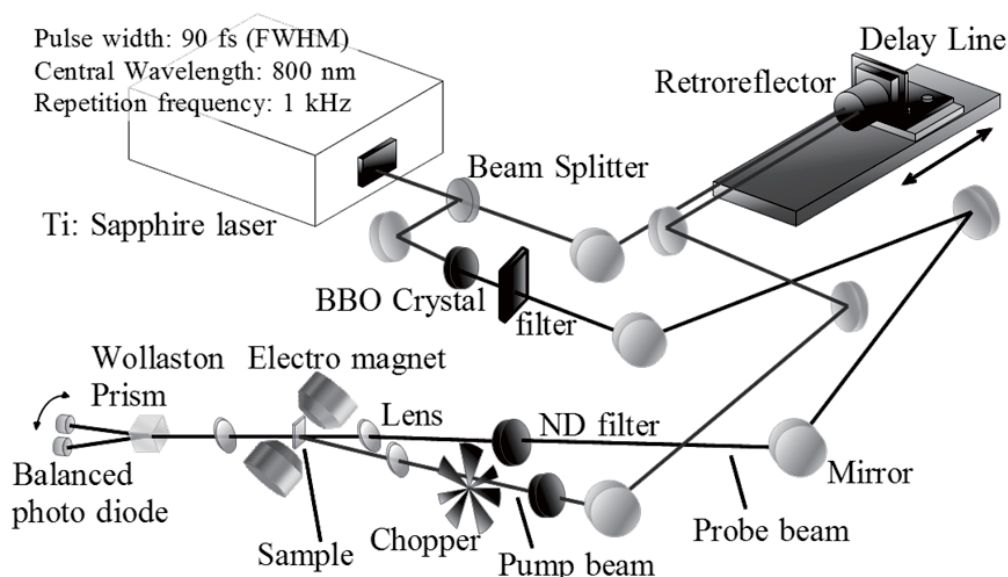


図 7-1 磁性多層膜における磁化ダイナミクスの層分離測定に用いた全光ポンプ・プローブ法による測定セットアップの概略図

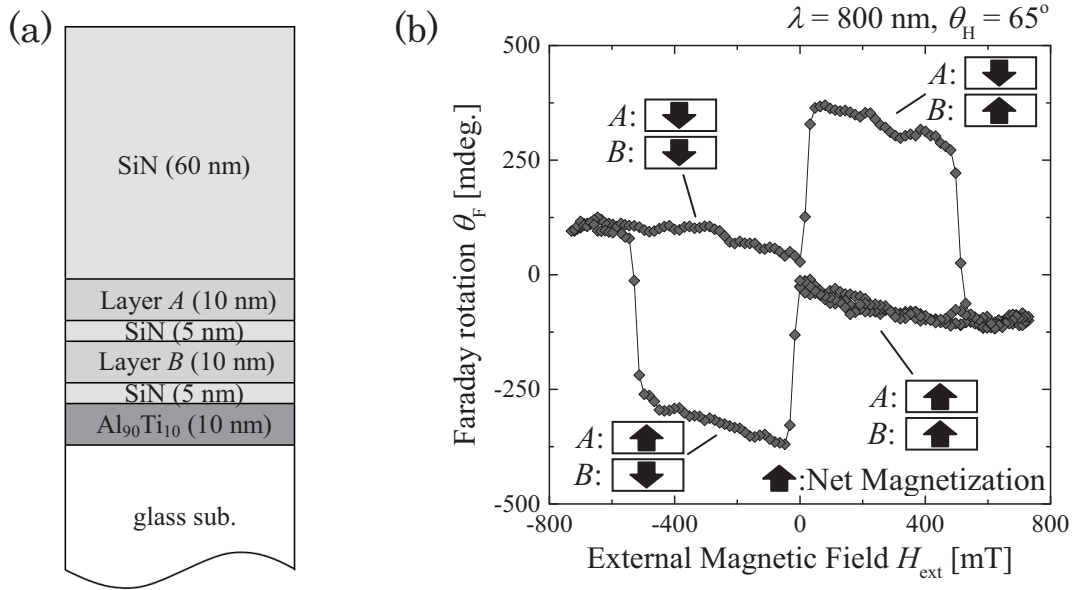


図 7-2 (a) SiN 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の層構成及び (b) ポンプ・プローブ測定条件において測定した磁気光学 Faraday ヒステリシスループ

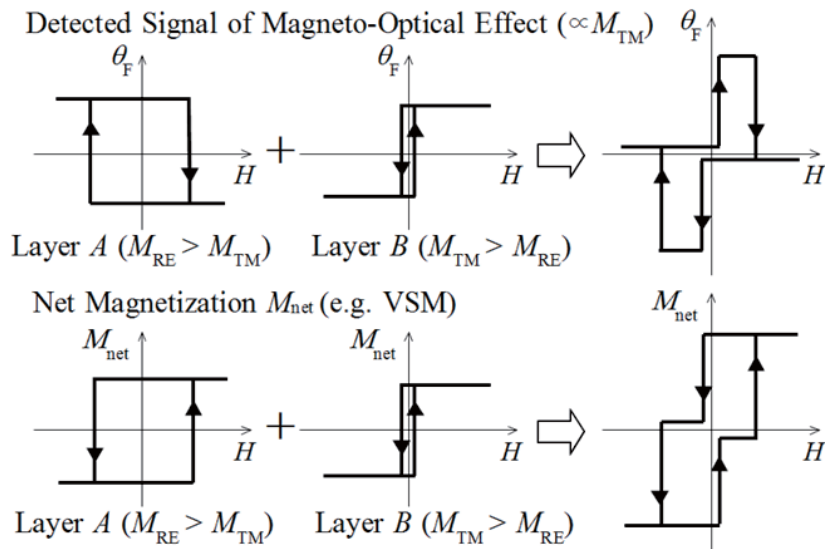


図 7-3 磁気光学効果により測定したフェリ磁性 GdFeCo 二層膜のヒステリシスループと各層の正味磁化の方向の関係

では図 7-3 に示すように、希土類磁化  $M_{RE} >$  遷移金属磁化  $M_{TM}$  (RE-rich) である A 層において、外部印加磁界に対するヒステリシスループの応答が逆符号となる。以上より、図 7-2 (b) は異なる磁気特性を有する二磁性層の応答を合成したもの

であることが確認できる。ヒステリシスループより、二磁性層間の磁気交換結合が 5 nm 厚 SiN 中間層の挿入によって分断され、各磁性層が独立に磁化反転していることを確認できる。以降、各磁性層の  $M_{\text{net}}$  の方向の対応にて、平行 (*P-state*) 及び反平行 (*AP-state*) と定義する。

本節では、超短パルス光照射後の上記二層構造試料の極短時間加熱過程ならびに各層内・層間におけるエネルギー散逸過程を明らかとすることを目的としている。そのため、外部磁界  $H_{\text{ext}} = 0$  の条件において、減磁とその回復過程について層分離計測を行う。図 7-4 は外部磁界  $H_{\text{ext}}$  の印加の有無による磁性二層膜の Faraday 回転角  $\theta_F$  と各層の磁化の関係を模式的に表した図である。ここでは、磁化のプロブ光入射軸射影成分に比例する  $\theta_F$  の時間発展にて縦緩和過程のみを測定することを検討しており、磁化歳差運動による影響を取り除くため外部磁界  $H_{\text{ext}}$  を印加せずに、二層の磁化が平行 (*P-state*) 及び反平行 (*AP-state*) における透過率変化率  $\Delta T / T$  及び Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の測定を行う。

図 7-5 に、誘電体中間層を有する上記 GdFeCo 二層膜における、上記条件において測定した (a) 透過率変化率  $\Delta T / T$ , (b) Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の時間発展を

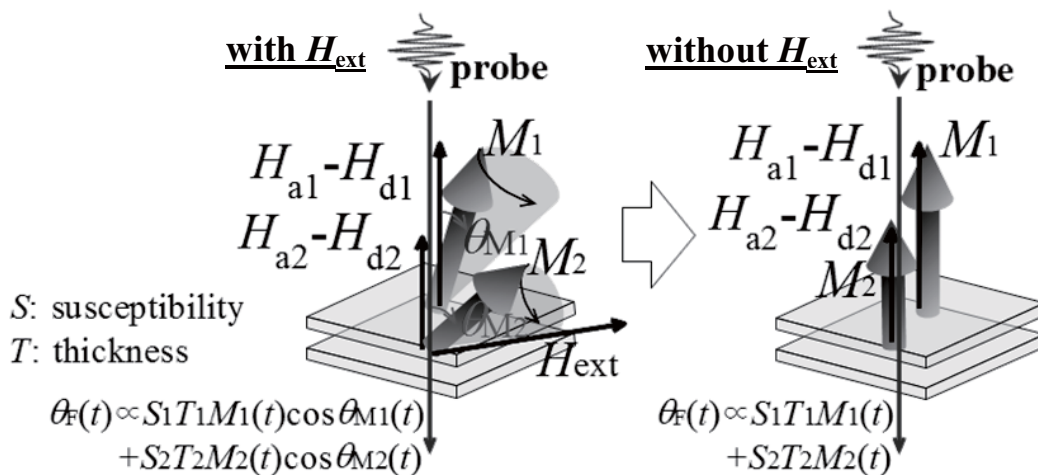


図 7-4 外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  の有無による磁性二層膜の Faraday 回転角  $\theta_F$  と各層の磁化の関係

示す。図中には、各層の正味磁化  $M_{\text{net}}$  及び副格子磁化  $M_{\text{RE}}$ ,  $M_{\text{TM}}$  の方向について、 $P$ -state 及び  $AP$ -state における定義図を挿入している。まず、透過率変化率  $\Delta T/T$  の測定結果に着目する。すでに第5章にて述べたように、 $\Delta T/T$  の変化は電子温度上昇に対応している<sup>7-4)</sup>。 $\Delta T/T$  はポンプ光照射後、約 0.5 ps (図中  $\Delta t \sim t_1$ ) で変化が最大となり、その後回復の傾きが約 1.1 ps (図中  $\Delta t \sim t_2$ ) にて変化していることが確認できる。このことは、第5章における検討と同様に、電子温度  $T_e$  は約 0.5 ps で最大となり、約 1.1 ps で格子温度とほぼ平衡状態へ達していることを意味すると考えられる<sup>7-8)</sup>。二層の磁化が平行 ( $P$ -state) 及び反平行 ( $AP$ -state) の状態において  $\Delta T/T$  の変化挙動に有意な差は確認できず、試料の電子温度加熱及び電子-格子平衡化過程は概ね同一であるといえる。すなわち、各状態での光エネルギー吸収が概ね等しいことを示している。それに対し、Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の時間発展に着目すると、その応答は  $P$ -state と  $AP$ -state にて明確に異なることが確認できる。これは、 $P$ -state と  $AP$ -state の各測定条件において  $B$  層の磁化方向が逆方向であり、下記の式に示すように  $\Delta\theta_F$  への寄与も逆符号となるためである。

$$\Delta\theta_F^P = \Delta\theta_F(M_{\text{TM}}^A) - \Delta\theta_F(M_{\text{TM}}^B) \quad (7.1)$$

$$\Delta\theta_F^{AP} = \Delta\theta_F(M_{\text{TM}}^A) + \Delta\theta_F(M_{\text{TM}}^B) \quad (7.2)$$

ここで、 $P$ -state 及び  $AP$ -state における  $\Delta\theta_F$  の時間発展の測定結果より、各磁性層の磁化応答に起因した  $\Delta\theta_F$  成分に分離することを考えると、上式より、

$$\Delta\theta_F^A = \frac{(\Delta\theta_F^{AP} + \Delta\theta_F^P)}{2} \quad (7.3)$$

$$\Delta\theta_F^B = \frac{(\Delta\theta_F^{AP} - \Delta\theta_F^P)}{2} \quad (7.4)$$

と表すことが出来る。つまり、上記の式 (7.3) 及び (7.4) より、各層の磁化からの  $\Delta\theta_F$  への寄与は、 $P$ -state と  $AP$ -state における  $\Delta\theta_F$  の測定結果の和及び差を求め

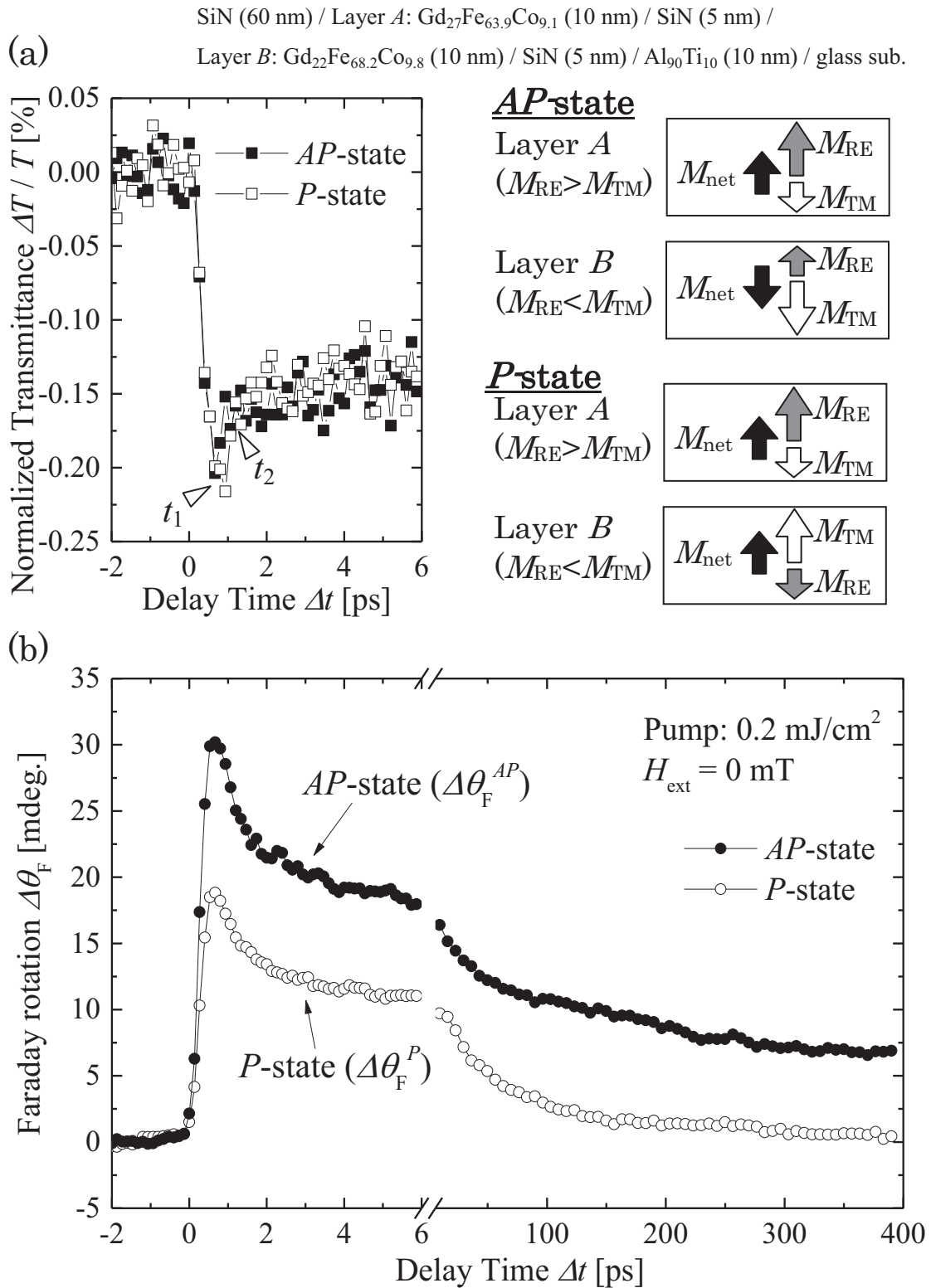


図 7-5 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜における (a) 透過率変化率  $\Delta T / T$  および (b) Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の時間発展の全光ポンプ・プローブ法による測定結果

ることで分離可能となる。

本手法によって各層からの  $\Delta\theta_F$  への寄与を分離した結果を図 7-6 に示す。いずれの磁性層においても、 $\Delta\theta_F$  の変化は  $\Delta t \sim 1.1$  ps ( $\Delta t \sim t_2$ ) より短い時間で最大となっており、その大きさはポンプ光入射側である A 層において約 25 mdeg., B 層において約 5 mdeg. と、5 倍程度異なっている。分離結果とヒステリシスループの比較から  $\Delta t \sim$  ps における最大減磁量  $L_{\text{demag}}$  を定義すると、A 層にて約 13 %, B 層で約 3 % となる。

磁化の温度依存性は線形ではないため、減磁量  $L_{\text{demag}}$  と温度上昇、そして光学エネルギー吸収量を直接比較することはできない。そこで、2 種の 10 nm 磁性層厚 GdFeCo 試料 SiN (60 nm) / Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. (Sample A:  $x = 27$ , Sample B:  $x = 22$ ) を作製し、磁気光学効果の温度依存性より各

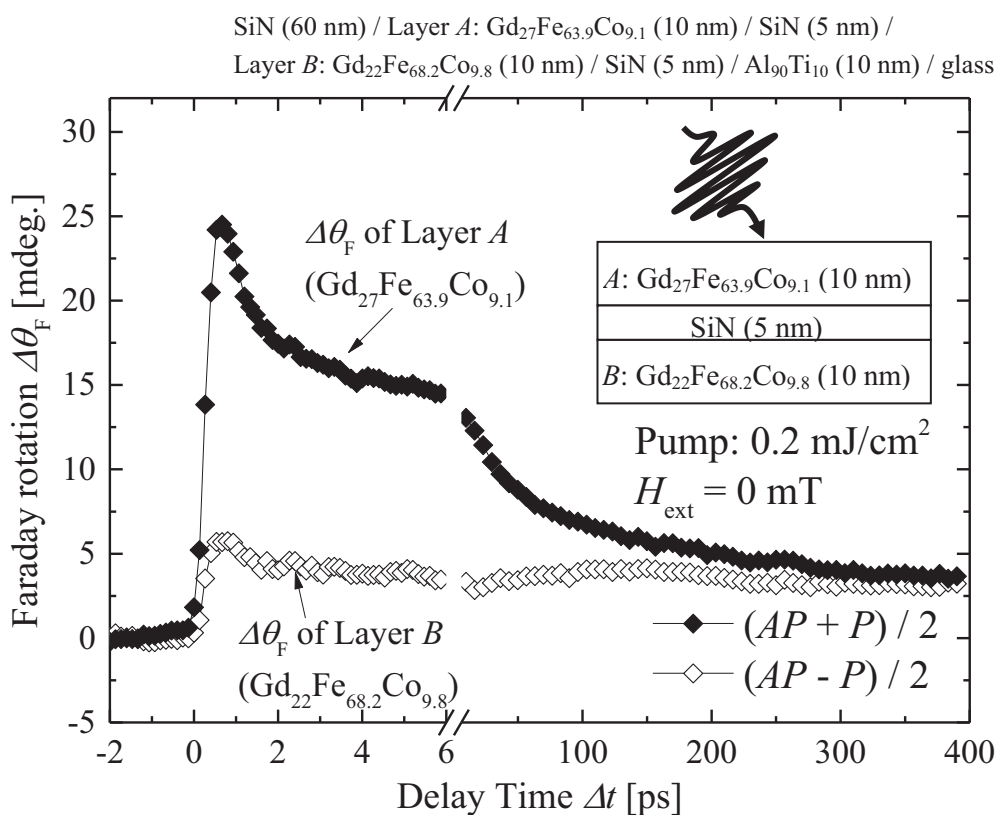


図 7-6 各磁性層における  $\Delta\theta_F$  への寄与を P-state 及び AP-state における  $\Delta\theta_F$  測定結果 (図 7-5) の和及び差から求めた結果



磁性層の温度上昇を見積もることを検討する。上記 10 nm 磁性層厚 GdFeCo 薄膜試料 Sample A 及び Sample B における, 磁気光学 Kerr 回転角  $\theta_K$  及び Faraday 回転角  $\theta_F$  の温度に対する変化を室温における値で規格化したものを図 7-7 に示す。GdFeCo における磁気光学 Kerr 効果及び Faraday 効果は上述の通り遷移金属磁化  $M_{TM}$  と対応しており<sup>7-5)-7-7)</sup>, 図 7-7 は  $M_{TM}$  の温度依存性と対応する。磁気光学効果の温度依存性より, 電子系-格子系温度平衡化 ( $\Delta t \sim 1.1$  ps) 後における二層膜内の各磁性層の温度を見積もると, A 層: 約 130°C, B 層: 約 50°C となる。

次に, 二層膜試料中の各磁性層における光エネルギー吸収量について検討を行うため, 上記 10 nm 磁性層厚 GdFeCo 薄膜試料 Sample A 及び Sample B の, 中心波長 400 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅) のパルス光における実効反射率  $Ref$ , 透過率  $Tr$ , 吸収率  $Ab$  を, 時分解計測に用いた光学レイアウトにおいて計測した。結果, Sample A では  $Ref \sim 16\%$ ,  $Tr \sim 29\%$ ,  $Ab \sim 55\%$ , Sample B では  $Ref \sim 18\%$ ,  $Tr \sim 28\%$ ,  $Ab \sim 54\%$  となり, 反射率・透過率・吸収率は GdFeCo 磁性層の組成によって殆ど変化が見られないことを確認した。ここで, モデル簡略化のため基

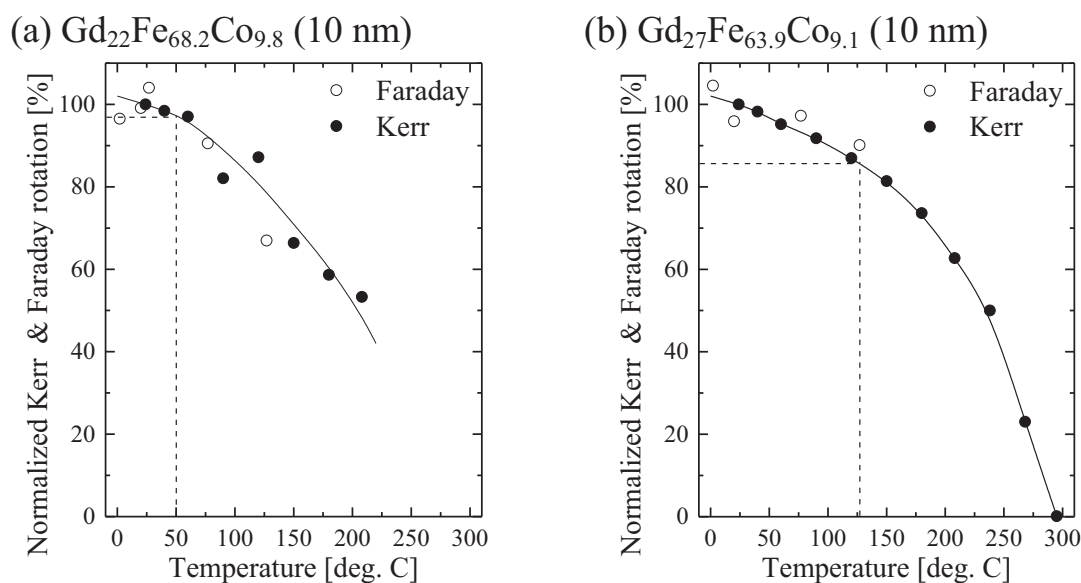


図 7-7 GdFeCo (10 nm) 試料における Kerr 回転角  $\theta_K$  及び Faraday 回転角  $\theta_F$  の温度依存性(室温における  $\theta_K$ ,  $\theta_F$  で規格化)

板及び SiN 層の光学吸収, 多重反射, 光学干渉の影響を無視し, 二層膜中でポンプ光照射側にあたる A 層を透過した光 (入射光の 29%) のうち 54% を B 層が吸収すると仮定する。このとき, 二層膜における B 層の吸収光量は入射光の 15.6% 程度となり, A 層の光学エネルギー吸収量 (入射光の 55%) は B 層に対し約 3.5 倍と見積もることが出来る。以上より, 二層膜内における各磁性層の光学吸収・透過特性が単層 10 nm 厚 GdFeCo 薄膜と同等であるとした上記仮定に基づく見積もりの結果は, 時分解計測結果における二磁性層の減磁量の差異を概ね説明できる。すなわち, 各磁性層の減磁量  $L_{\text{demag}}$  の差は, 多層膜内における電界強度分布に起因した光エネルギー吸収量差と, 磁性層間に挿入した誘電体中間層が電子系-格子系の非平衡下における二層間の電子温度平衡化を抑制する<sup>7-2)</sup>ことが原因であることを裏付ける。

また, その後各磁性層の  $\Delta\theta_f$  が再び同程度となるまでの時間から, 今回の励起条件において, 格子振動を介した二磁性層間の格子温度平衡化には  $\Delta t \sim 400$  ps を要することが明らかとなった。

なお, 本節で述べた層分離測定法は, 保磁力の異なる複数の磁性層からなる多層膜においても, 特定の磁性層の磁化方向のみが異なる 2 状態を作ることで, 二層膜と同様に上記手法を適用して, 層分離計測することが可能と考えられる。

### 7.3. 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の磁化歳差運動

前節では, 磁気交換結合を分断した多層膜試料における磁化ダイナミクスの層分離計測法について述べ, 磁性層間に誘電体中間層を挿入することで磁気交換結合及び電気伝導を分断した GdFeCo 二層膜の減磁過程ならびにその後の回復過程の測定結果へ適用を行った。結果, 光エネルギー吸収量の差により各層の電子温度上昇が異なり, 電子系と格子系の温度状態が各層内で平衡化した後

も各磁性層が異なる温度状態をとること、そして各磁性層間の温度平衡化には数 100 ps を要することが明らかとなった。本節では、上記条件下における各磁性層の磁化歳差運動について、同様に層分離計測することを検討する。

二磁性層の正味磁化  $M_{\text{net}}$  が平行 ( $P$ -state) 及び反平行 ( $AP$ -state) の各条件において、 $H_{\text{ext}} = 320$  mT を試料膜面法線より  $65^\circ$  傾けて印加し、前述の全光ポンプ・プローブ法により磁化歳差運動を励起・測定した。図 7-8 に測定結果を示す。ここで、 $P$ -state 及び  $AP$ -state における Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の応答差は、前節で示した減磁・回復過程の測定条件と同様、 $B$  層の磁化が逆方向であり、 $\Delta\theta_F$  への寄与も逆符号となるためである。そこで、前節で述べた層分離計測の手法を同様に適用し、各磁性層からの寄与に分離した結果を図 7-9 に示す。結果より、ポンプ (励起) 光の試料表面到達直後~ps のステップ状減磁過程における  $\Delta\theta_F$  の変

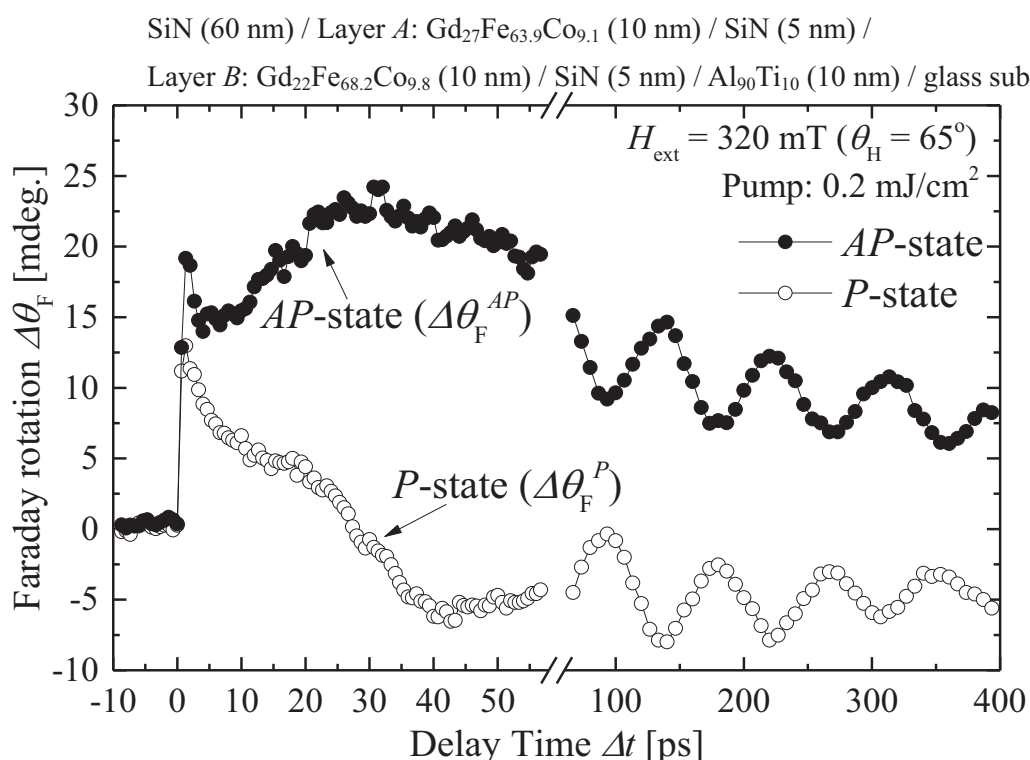


図 7-8 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜における平行 ( $P$ -state) 及び反平行 ( $AP$ -state) 磁化状態での Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の時間発展の測定結果 (外部磁界  $H_{\text{ext}} = 320$  mT)

化量は、 $A$  層で約 16 mdeg.,  $B$  層で約 3 mdeg.と、前節図 7-6 と同様にポンプ光入射側である  $A$  層が 5 倍程度大きいことを確認できる。なお、上記  $\Delta\theta_F$  の変化量が前節図 7-6 の結果と比較して小さな値となっているのは、薄膜試料に対し斜め方向に外部磁界  $H_{\text{ext}}$  を印加したことで各層の初期磁化方向が傾いており、磁化の大きさの変化に対し膜面垂直方向成分が小さくなるためである。

その後の各磁性層における  $\Delta\theta_F$  の時間発展より、磁化歳差運動に起因した減衰振動成分をそれぞれ明確に確認できる。図 7-9 の分離計測結果に対し Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式に基づくフィッティングを行ったところ、各磁性層の歳差運動周波数  $f$  は  $A$  層が約 30 GHz,  $B$  層が約 12 GHz であった。また、このときの実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は  $A$  層が約 0.18,  $B$  層が約 0.046 であった。二層膜内の各磁性層における  $f$  及び  $\alpha_{\text{eff}}$  の違いは、第 4 章で述べたようにフェリ

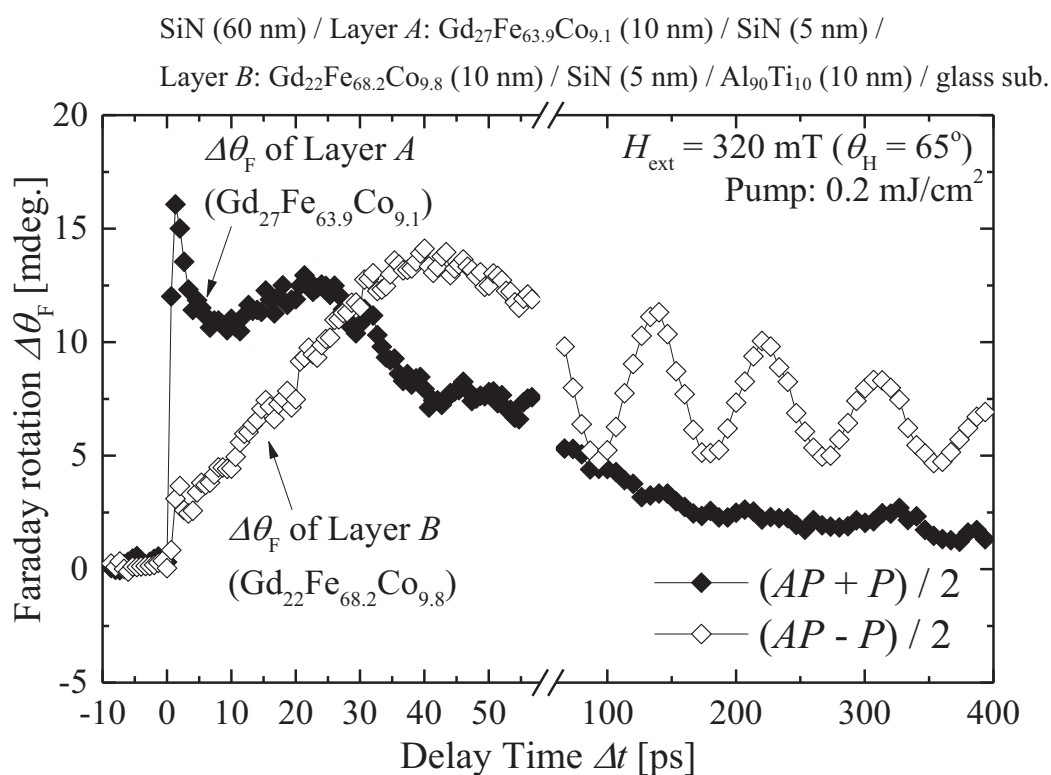


図 7-9 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜において励起した磁化歳差運動の層分離結果 (外部磁界  $H_{\text{ext}} = 320 \text{ mT}$ )

磁性合金である GdFeCo の  $f$  及び  $\alpha_{\text{eff}}$  が角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  近傍で著しい増大傾向を示す<sup>7-9)</sup>ためであると考えられる。なお、今回測定を行った GdFeCo 二層膜における A 層の磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  は 50°C 付近であり、 $T_{\text{CA}}$  は  $T_{\text{CM}}$  より数 10°C 高温側に存在すると考えられることから、今回の測定条件における A 層の磁化歳差運動は  $T_{\text{CA}}$  近傍におけるものであると考えられる。

このことを裏付けるため、二層膜試料内の各磁性層と組成・磁性層厚が同じ GdFeCo 単層薄膜試料 SiN (60 nm) / Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. (Sample A:  $x = 27$  at. %, Sample B:  $x = 22$  at. %) を用い、比較を行う。SQUID-VSM により測定した、これら試料における正味磁化の温度依存性を図 7-10 に示す。正味磁化の測定より、Sample A ( $x = 27$  at. %) の磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  が約 320 K であり、二層膜試料における A 層の磁化補償温度と概ね一致することが確認できる。次に、二層膜の測定と同様の条件において、磁化歳差運動の測定を行った。ポンプ・プローブ法による、各試料の磁化ダイナミクス測定結果を図 7-11

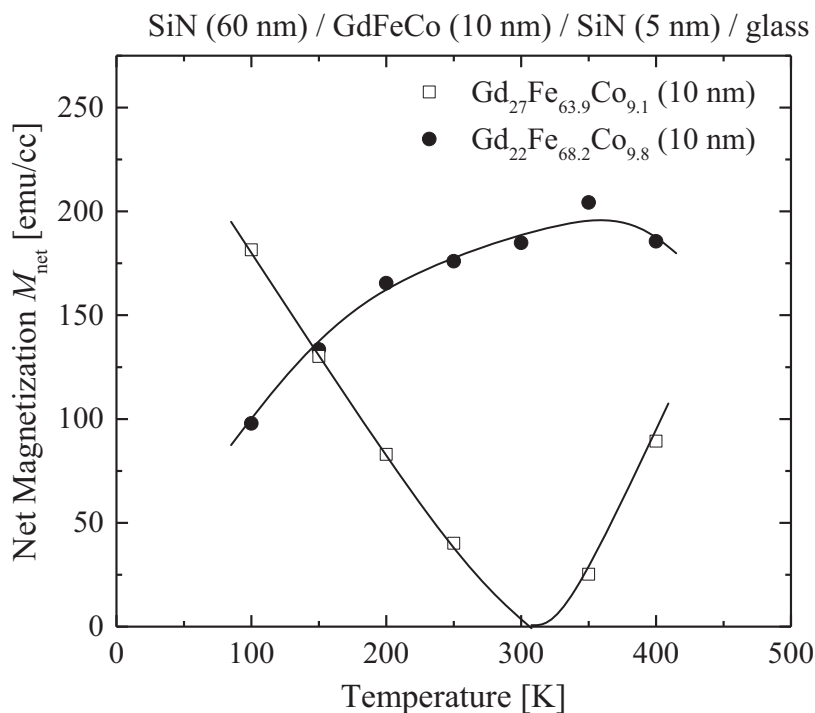
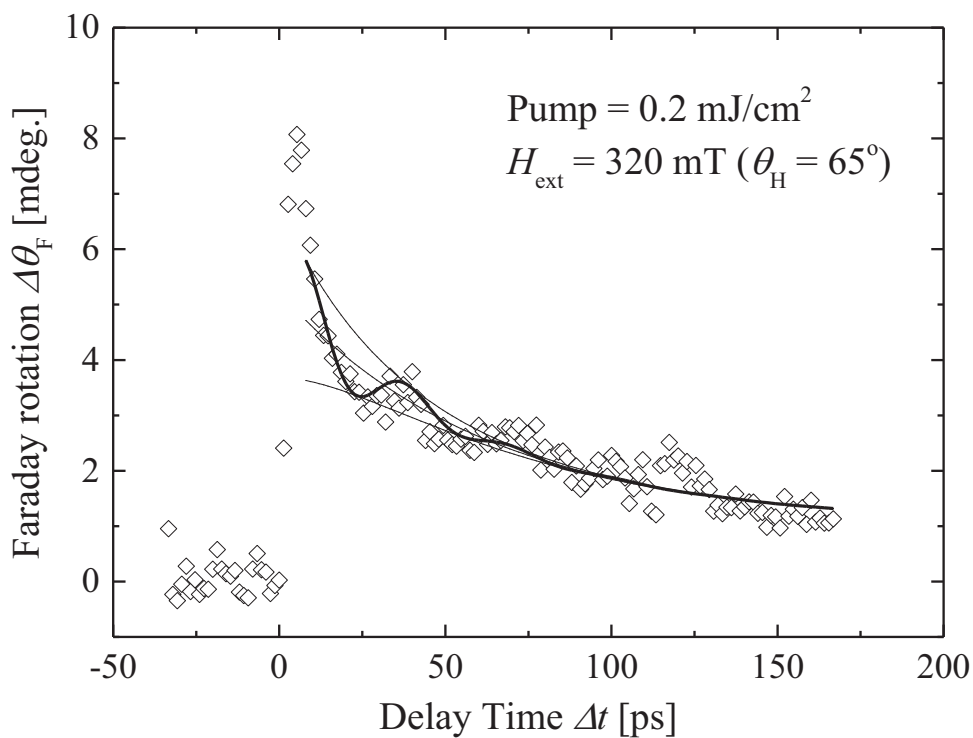


図 7-10 10 nm 磁性層厚 GdFeCo 試料における正味磁化の温度依存性

(a) Sample A: SiN (60 nm) / Gd<sub>27</sub>Fe<sub>63.9</sub>Co<sub>9.1</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub.



(b) Sample B: SiN (60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub.

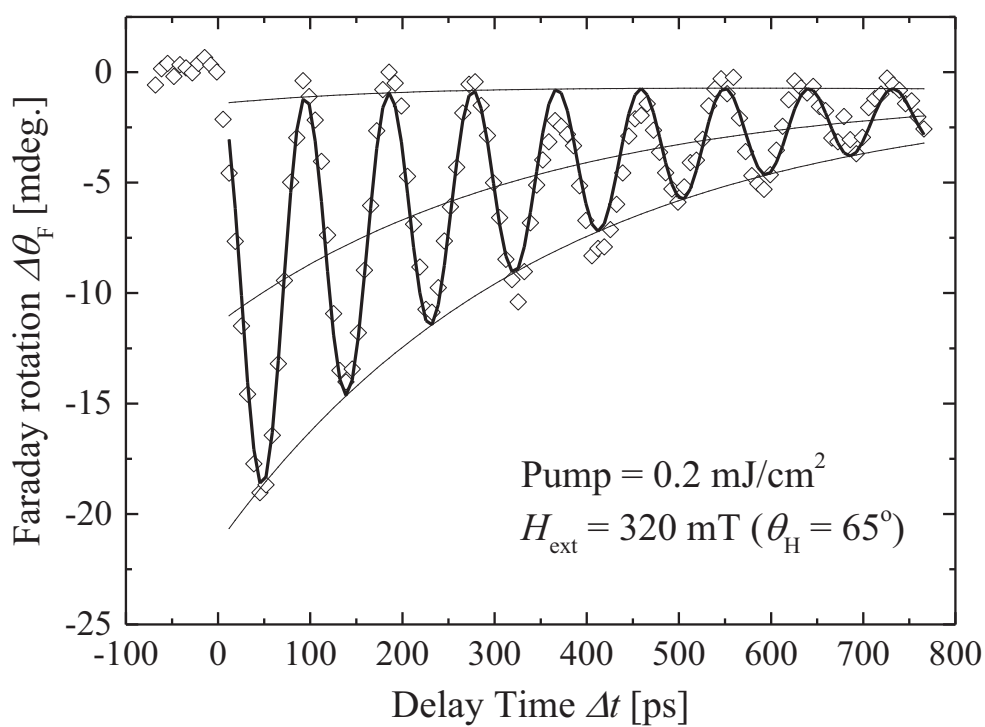


図 7-11 10 nm 磁性層厚 GdFeCo 試料の磁化歳差運動計測結果

に示す。磁化ダイナミクスの測定結果に対し LLG 方程式に基づきフィッティングを行ったところ、各サンプルの歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は、Sample A ( $x = 27$  at. %) では  $f \sim 31.4$  GHz,  $\alpha_{\text{eff}} \sim 0.22$ , Sample B ( $x = 22$  at. %) では  $f \sim 11.0$  GHz,  $\alpha_{\text{eff}} \sim 0.040$  であり、上記の二層膜内各磁性層における分離計測結果と近い値をとることが確認できた。

これより、歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の各磁性層間での差異は、主に GdFeCo における磁化動特性の温度・組成依存性によるものであるといえる。また、磁化歳差運動による  $\Delta\theta_F$  の振動成分の振幅が、A 層において B 層と比較して小さいのは、磁化補償温度の近傍であるために  $M_{\text{net}}$  が非常に小さく、外部磁界  $H_{\text{ext}}$  から受けるトルクも小さくなるためであると考えられる。

このように、層分離計測の結果と単層試料の測定結果の比較より、磁気交換結合が分断された磁性多層膜構造試料における磁化ダイナミクスは、磁性層毎に独立して扱うことが可能であることを実験的に明らかとした。各磁性層の磁化歳差運動が組成及び温度状態に対応したものとして独立に扱えるということは、磁性多層膜構造の利用を前提とした各種磁気デバイス・スピントロニクスデバイスの研究・開発に対する応用上の観点のみならず、短時間領域での多層膜中の温度評価技術としても応用可能であることを意味する。周波数領域での検討が可能となるため、mdeg.オーダーの微小な磁気光学旋光角変化を用いた前節の温度較正法と比較してより高い精度にて、各層の電子系－格子系エネルギー平衡化後の温度状態を見積もりが可能となるといえる。

## 7.4. 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の誘電体中間層厚依存性

ここまで、誘電体である SiN 中間層により磁性層間の磁気交換結合及び電気伝導を分断した GdFeCo 二層膜試料において、各磁性層の磁化の応答を分離計測する手法を提案し、実際に分離計測可能であることを示した。結果、電子系—格子系の温度非平衡下における電子温度上昇に起因した $\sim$ ps 時間領域での減磁過程では、光エネルギー吸収量の差に起因してポンプ光入射面側の磁性層の方が減磁量大きくなること、そしてその後数 100 ps にわたる各磁性層の磁化歳差運動は独立に扱えることが明らかとなった。本節では、二磁性層間の SiN 中間層厚を変化させて同様に各磁性層の磁化ダイナミクスを分離計測し、超短パルス光照射による磁性多層膜内の極短時間加熱ならびにエネルギー散逸過程についてさらなる詳細な検討を行う。

測定試料には、マグネトロンスパッタ法にて作製した SiN (60 nm) / Gd<sub>27</sub>Fe<sub>63.9</sub>Co<sub>9.1</sub> (10 nm) / SiN ( $x$  nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. ( $x = 3, 5, 10$  nm) を用いた。外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は膜面法線より 65° 傾けて印加し、室温にて中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅) のレーザーを光源としたポンプ・プローブ法にて測定を行う。プローブ光は BBO 結晶を用いて中心波長 400 nm に変換して用いた。まず、同セットアップにおいて中心波長 400 nm のプローブ光を用い、ポンプ光の照射をせずに Faraday 効果により測定した  $x =$  (a) 10 nm 及び (b) 3 nm の試料のヒステリシスループを図 7-12 に示す。なお、これら試料は前節で用いた試料と下地層が異なり、Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> 層を有しておらず各層の保磁力  $H_c$  も異なるが、 $3 \leq x \leq 10$  nm の範囲においていずれの場合も、各磁性層間の磁気交換結合は同様に分断されている事を確認した。また、各磁性層におけ



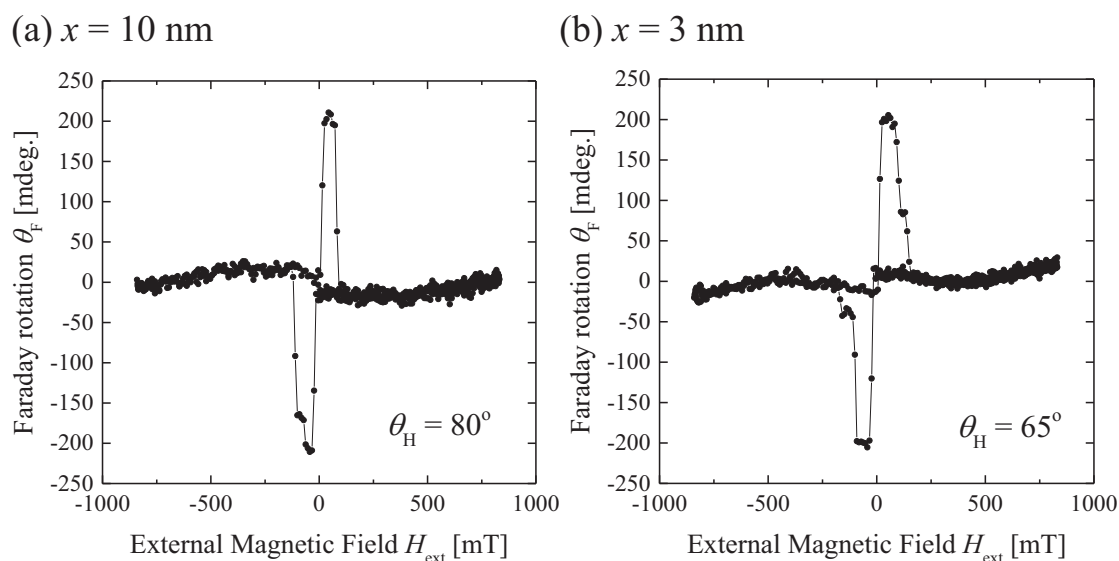


図 7-12 誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜試料における Faraday ヒステリシスループの SiN 中間層厚依存性

る Faraday 回転角  $\theta_F$  は誘電体中間層厚  $x$  に対し僅かに差異を有しているが、これは主に光学的な要因によると考えられる。

これら試料に対し、試料表面におけるポンプ光のエネルギー密度を変化させ、各層の磁化の応答を計測した。 $x = 5 \text{ nm}$  試料における外部印加磁界  $H_{\text{ext}} = 0 \text{ mT}$ 、試料表面でのポンプ光エネルギー密度  $F_p = 0.39 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  での測定結果を図 7-13 に示す。各磁性層における Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  は、7.2 節で述べたように、各層における磁化が平行・反平行の状態においてそれぞれ測定し、その和及び差を求めることで分離を行っている。 $\sim\text{ps}$  の時間領域における  $A$  層と  $B$  層の減磁量の比は前節までで用いた二層膜試料と異なるが、ポンプ光入射面である  $A$  層の減磁量が  $B$  層と比較して大きい点は同様であり、その後各磁性層の遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  に対応した  $\Delta\theta_F$  が格子系の層間における熱拡散を介して平衡化し同程度となるには、 $\Delta t \sim 200 \text{ ps}$  程度を要することを確認した。

ここで、誘電体である SiN 中間層厚  $x$  の異なる各試料において、各磁性層の減磁量を  $\Delta\theta_F / \theta_F$  より求め、二層間の比について検討した。結果、ポンプ光入射

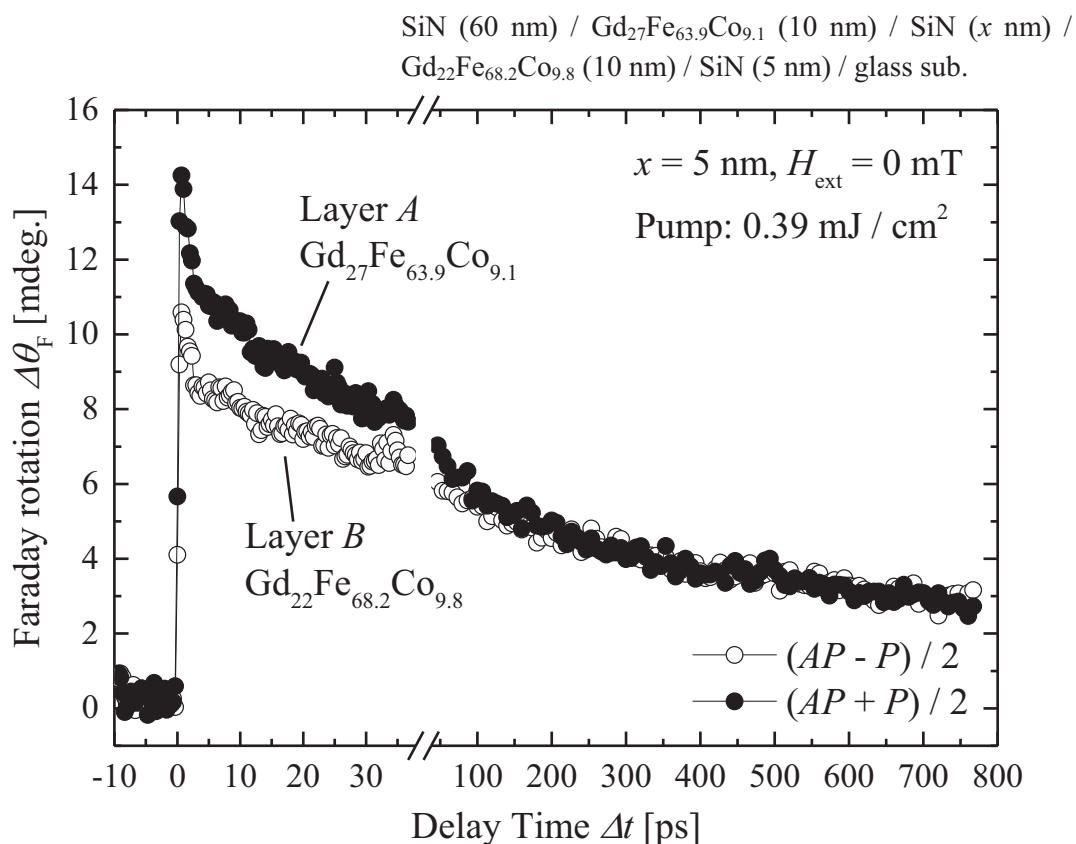


図 7-13 誘電体中間層厚  $x = 5 \text{ nm}$  の GdFeCo 二層膜試料における各磁性層の超短パルス光照射後の減磁及び回復過程

面側である  $A$  層の減磁の大きさは、 $x = 10 \text{ nm}$ ,  $5 \text{ nm}$ ,  $3 \text{ nm}$  の各条件においてそれぞれ、 $B$  層に対して約 1.7 倍、約 1.4 倍、約 1.3 倍であった。しかしながら、磁化量の変化は温度に対して線形ではない。そこで、磁気光学ヒステリシスループより求めた Faraday 効果の旋光角  $\theta_F$  の温度依存性より、各磁性層の到達最高温度のポンプ光エネルギー密度  $F_p$  及び SiN 中間層厚  $x$  に対する変化を見積もった。結果を図 7-14 に示す。第 5 章での検討にて述べたように、超短パルス光照射による GdFeCo 薄膜の  $\sim \text{ps}$  時間域での減磁過程は、主に電子温度上昇と対応した、電子系—格子系の温度平衡化よりも短い時間領域での現象である<sup>7-2)</sup>。そのため、媒体内の温度についての議論は複雑となるが、ここでは簡単化のため、電子系—格子系のエネルギー平衡下の状態における  $\theta_F$  の温度依存性の静的な測

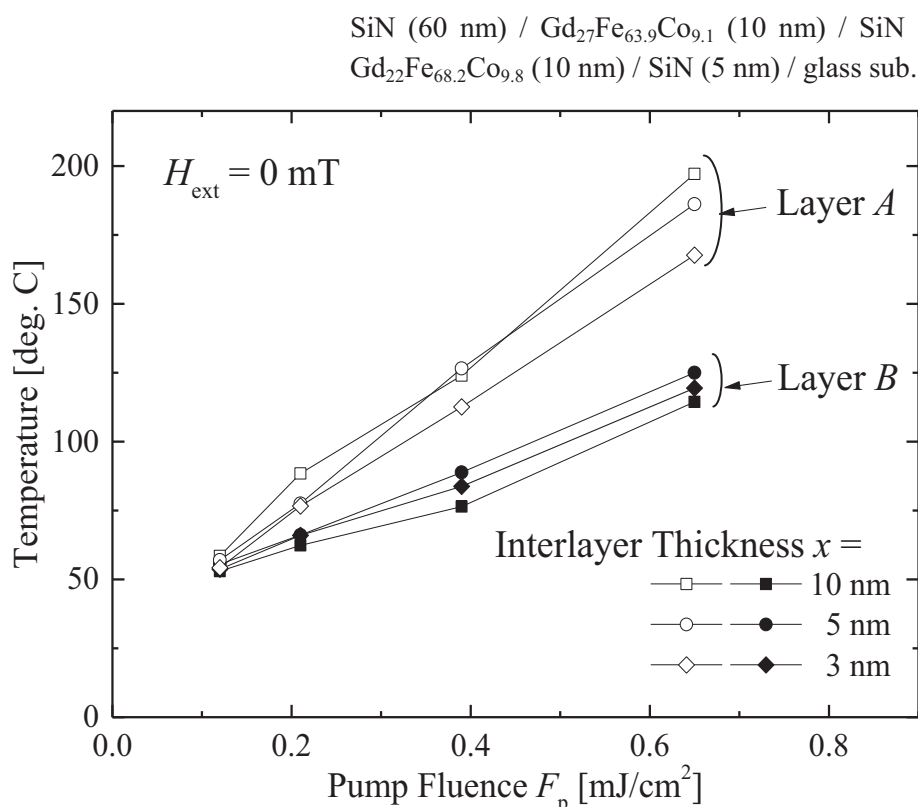


図 7-14 ポンプ光照射後の減磁量より見積もった各層の到達最高温度の誘電体中間層厚依存性

定結果を用いて見積もりを行っている。図 7-14 より、ポンプ光エネルギー密度  $F_p$  の増大とともに到達最高温度も線形的に増大していることが確認できる。また、いずれの SiN 中間層厚  $x$  の試料及びポンプ光エネルギー密度  $F_p$  の条件においても、ポンプ光入射面側である  $A$  層の温度上昇が  $B$  層よりも大きいことを確認できる。なお、見積もった到達温度は、SiN 中間層厚  $x$  の変化に対し一部上下しているが、各測定条件においてポンプ光エネルギー密度  $F_p$  がわずかに変動したためと考えられる。そこで、各ポンプ光エネルギー密度  $F_p$ 、SiN 中間層厚  $x$  の条件における  $A$  層と  $B$  層の室温 (24°C) からの温度上昇の比で表したものが図 7-15 である。結果より、SiN 中間層厚  $x$  の増大に伴い、 $A$  層と  $B$  層の温度上昇比も増大していることが確認できる。 $F_p = 0.65 \text{ mJ/cm}^2$  及び  $0.39 \text{ mJ/cm}^2$  の条件では中間層厚  $x$  に対する温度上昇比はほぼ一致しており、 $x = 10 \text{ nm} \sim 3 \text{ nm}$  とした

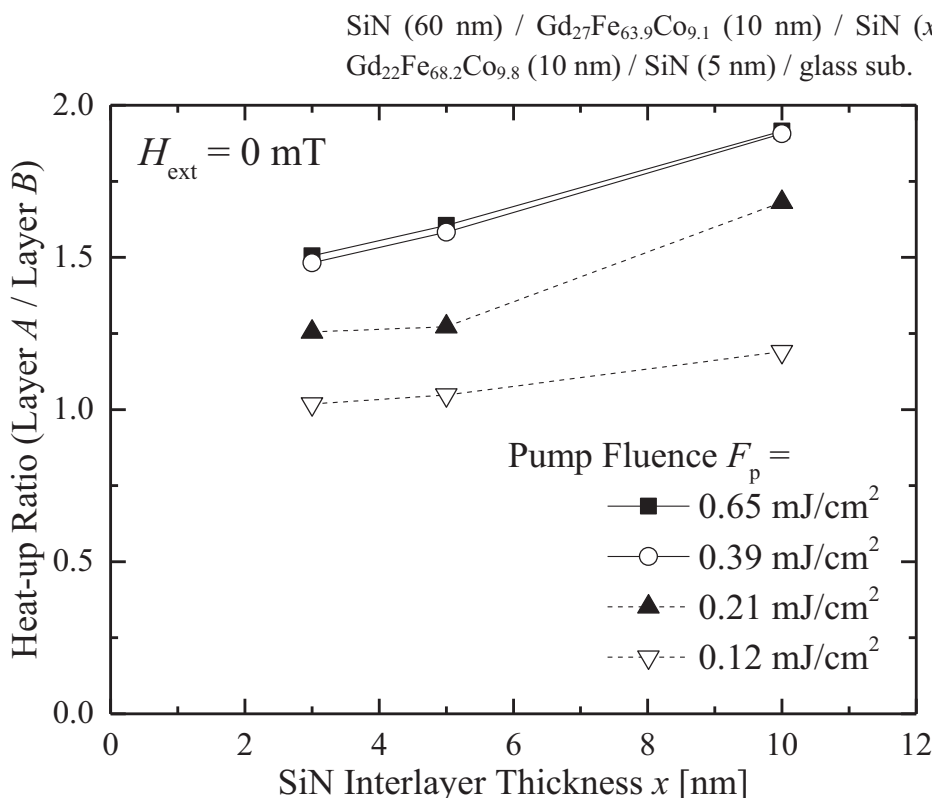


図 7-15 ポンプ光照射後の減磁量より見積もった各層の温度上昇比の誘電体中間層厚依存性

ときに 1.9 倍～1.5 倍の範囲で変化していることが確認できる。これは、誘電体 SiN 中間層厚の増加と共に二磁性層間の電気伝導が抑制され、電子系のエネルギー散逸も抑制されたためと考えられる。一方、 $F_p = 0.21 \text{ mJ/cm}^2$  及び  $0.12 \text{ mJ/cm}^2$  のときには二磁性層間の温度上昇比が減少してみえるが、 $F_p$  の変動及び  $F_p$  の低下に伴う減磁量の減少により S/N が低下したことが主因と考えられる。

次に、SiN 中間層厚  $x = 5 \text{ nm}$  試料において、外部印加磁界  $H_{\text{ext}} = 54 \text{ mT}$  としたときの測定結果を図 7-16 に示す。結果より、磁化の応答は、主に電子温度上昇に起因した  $\sim \text{ps}$  領域の減磁過程と、電子・格子系平衡化後数  $100 \text{ ps}$  にわたる歳差運動を伴った熱拡散過程の、2つの時間領域に明確に区分できることが確認できる。測定結果において、A 層の歳差運動に対応する減衰振動成分は確認できないが、これは測定条件における A 層の背景温度が磁化補償温度に近く、正味磁化

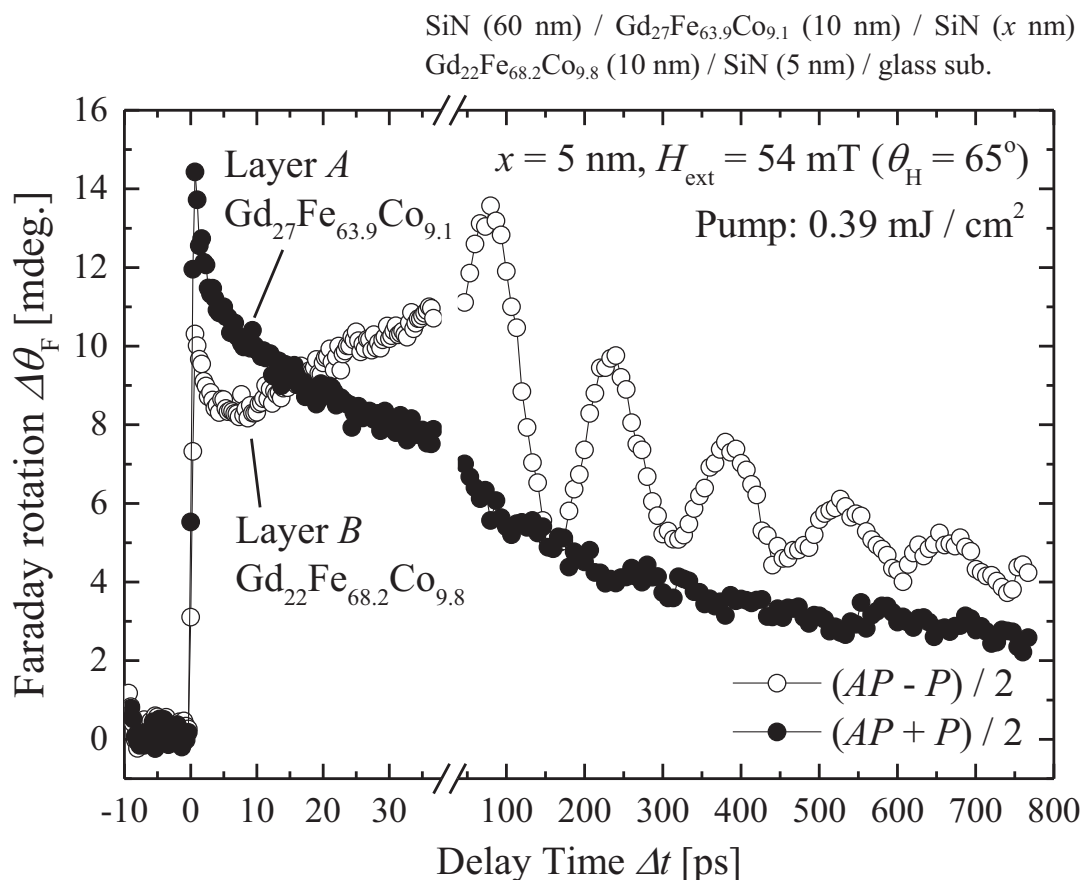


図 7-16 誘電体中間層厚  $x = 5 \text{ nm}$  の GdFeCo 二層膜試料における各磁性層の磁化歳差運動測定結果

$M_{\text{net}}$  が小さいために振幅も小さくなること、そして実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  が大きな値をとることが原因と考えられる。一方  $B$  層では、歳差運動周波数  $f \sim 6.9 \text{ GHz}$ ,  $\alpha_{\text{eff}} \sim 0.075$  の歳差運動に対応する減衰振動成分を明確に確認した。上述のように  $\Delta\theta_{\text{F}} / \theta_{\text{F}}$  の変化から各層の温度状態を直接見積もる場合、ポンプ光エネルギー密度  $F_{\text{p}}$  を低下させると  $\Delta\theta_{\text{F}}$  の変化量も小さくなり、結果として  $S/N$  も低下するため、精度が高いとはいえない。そこで、歳差運動を示す時間領域での多層膜中の温度推移解明を目的とし、 $H_{\text{ext}} = 54 \text{ mT}$  及び  $24 \text{ mT}$  の条件にて歳差運動を励起・測定し、 $B$  層の歳差運動周波数  $f$  の SiN 中間層厚  $x$  及びポンプ光エネルギー密度  $F_{\text{p}}$  の変化に対する依存性を検討した。図 7-17 (a) に  $H_{\text{ext}} = 54 \text{ mT}$

SiN (60 nm) / Layer A: Gd<sub>27</sub>Fe<sub>63.9</sub>Co<sub>9.1</sub> (10 nm) / SiN (x nm) /  
 Layer B: Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub.

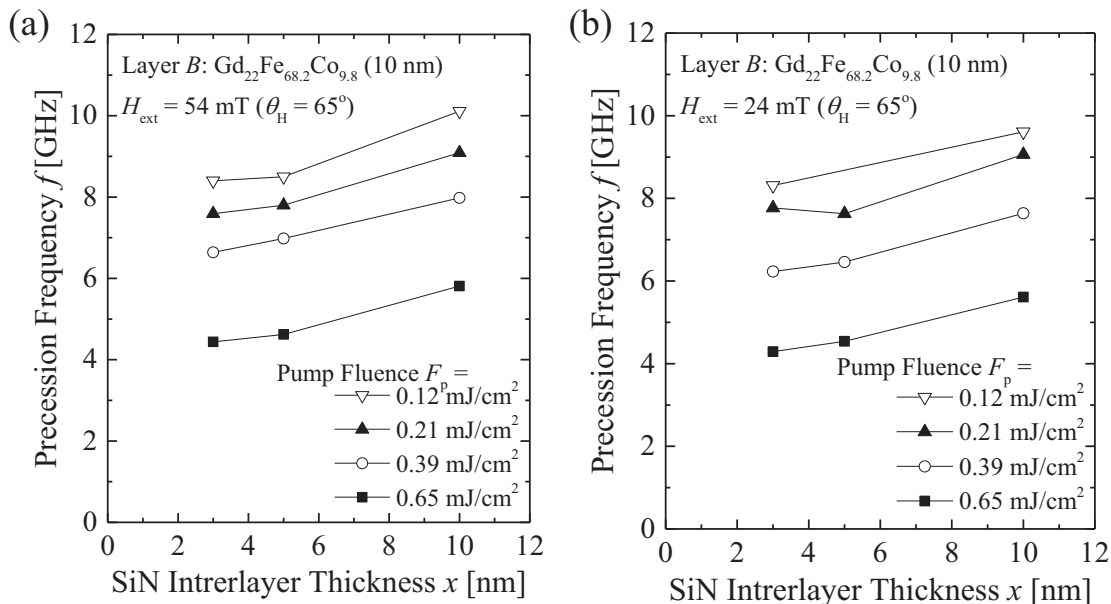


図 7-17 GdFeCo 二層膜試料における Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> 層の歳差運動周波数の誘電体中間層厚及びポンプ光エネルギー密度依存性

の結果を、(b) に  $H_{\text{ext}} = 24$  mT の結果をそれぞれ示す。いずれのポンプ光エネルギー密度  $F_p$  及び SiN 中間層厚  $x$  の条件でも、 $B$  層の歳差運動周波数  $f$  は外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  に対し、殆ど依存性を示さないことが確認できる。これは、内部磁界  $H_{\text{int}}$  (= 異方性磁界  $H_a$  - 自己減磁界  $H_d$ ) と外部磁界  $H_{\text{ext}}$  のベクトル和である実効磁界  $H_{\text{eff}}$  と歳差運動周波数  $f$  が比例の関係にあるが、 $H_{\text{ext}}$  が小さいときには、 $H_{\text{eff}}$  に対する  $H_{\text{int}}$  の寄与が相対的に増大するためである。すなわち、 $H_{\text{ext}}$  が十分小さいとき、 $f$  は概ね磁性層の磁気異方性によって決定されると考えられる。

このことは、外部磁界  $H_{\text{ext}}$  に対する周波数の依存性からも確認できる。図 7-18 に、SiN 中間層厚  $x = 5$  nm 試料における  $B$  層の歳差運動周波数  $f$  の外部磁界  $H_{\text{ext}}$  及びポンプ光エネルギー密度  $F_p$  に対する依存性を示す。高磁場域での  $f$  は  $F_p$  によらず概ね一致しており、 $H_{\text{int}}$  により主に決定されていることが確認できる。一方、低磁場域では  $F_p$  の上昇に伴い  $f$  が低下していることが確認できる。参考と

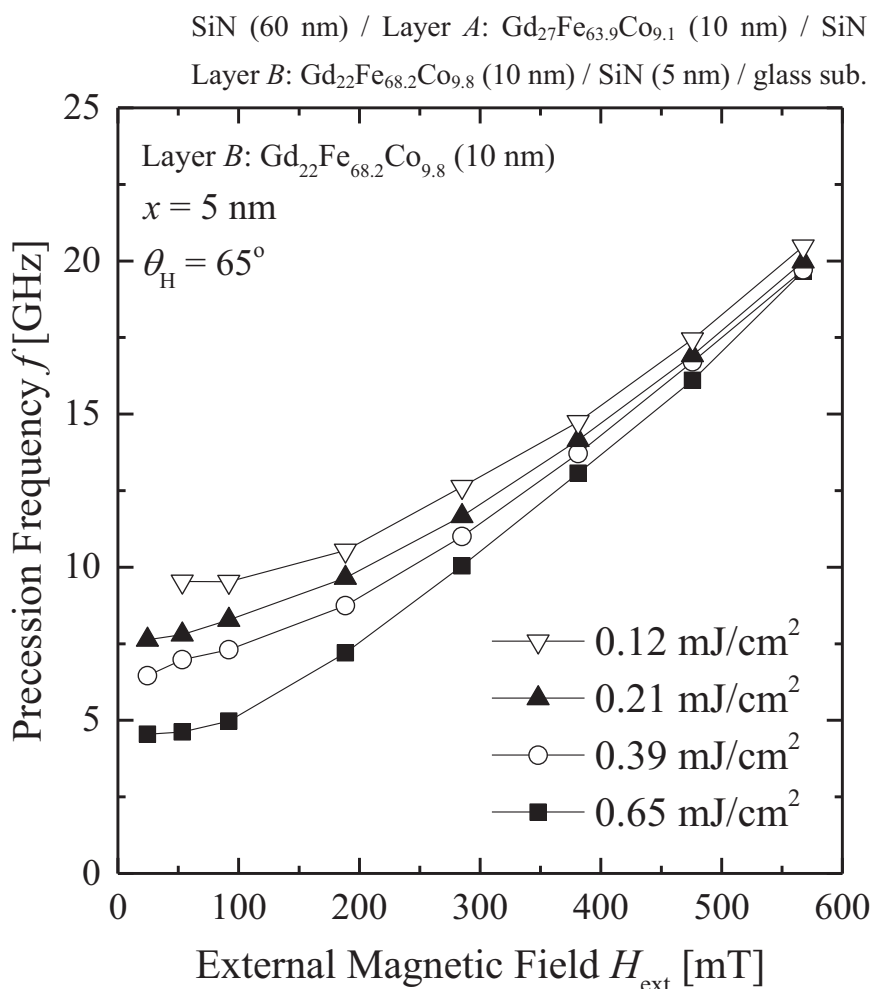


図 7-18 GdFeCo 二層膜試料 (SiN 中間層厚  $x = 5$  nm) における Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> 層の歳差運動周波数の外部印加磁界依存性

して、二層膜中の  $B$  層と組成・磁性層厚の等しい Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (10 nm) 単層試料 SiN (60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> (10 nm) / SiN (5 nm) / glass sub. 試料における、正味磁化  $M_{\text{net}}$ 、面内飽和磁界  $H_k$ 、異方性エネルギー  $K_u$  の温度依存性 (温度  $T = 200 \sim 400$  K) を図 7-19 に示す。 $M_{\text{net}}$  及び  $H_k$  は面直・面内方向にそれぞれ磁界を印加した条件での SQUID-VSM 測定より求めた。また  $K_u$  は、 $M_{\text{net}}$  と  $H_k$  を用い

$$K_u = \frac{(H_k + 4\pi M_{\text{net}})M_{\text{net}}}{2} \quad (7.5)$$

の式を用いて導出を行った。ここで、 $4\pi M_{\text{net}}$  は自己減磁界であり、 $H_k$  は実効的

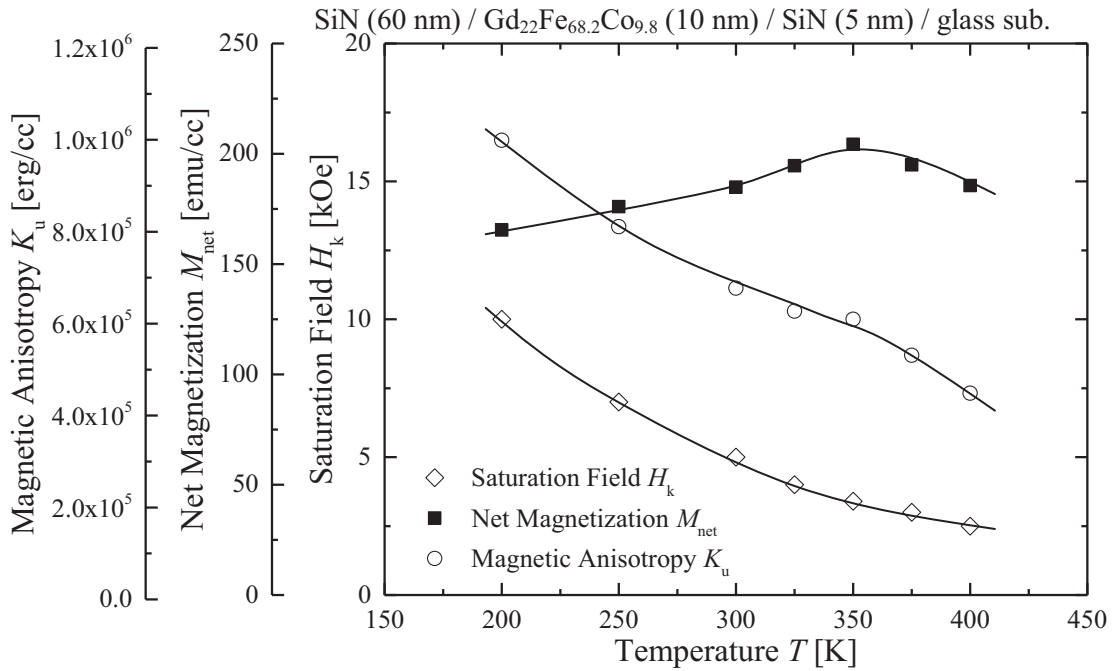


図 7-19 Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68.2</sub>Co<sub>9.8</sub> 試料における正味磁化  $M_{net}$ , 飽和磁界  $H_k$ , 異方性エネルギー  $K_u$  の温度依存性 ( $T = 200 \sim 400$  K)

異方性磁界である  $H_{int}$  に相当する。室温より高温域において  $K_u$  及び  $H_k$  は単調減少の傾向を示しており、低磁場域における  $f$  の  $F_p$  依存性を裏付けるものである。

上記観点から、図 7-17 で示した  $F_p$  及び  $x$  に対する  $f$  の依存性は、 $B$  層における磁気異方性の温度依存性を反映していると考えられる。第 5 章の検討より、コレクティブモードの歳差運動として扱えるまでに要する時間スケールは  $\Delta t \sim 6$  ps であり、電子系と格子系の温度状態が概ね平衡化する時間スケール ( $\Delta t \sim 1.1$  ps) よりも遅い。つまり、 $H_{ext}$  が小さいときの歳差運動周波数  $f$  の差は、電子系と格子系が概ね温度平衡化した後の  $B$  層の温度状態と対応すると考えられる。

ポンプ光エネルギー密度  $F_p$  に対する歳差運動周波数  $f$  の変化に着目すると、SiN 中間層厚  $x$  及び外部印加磁界  $H_{ext}$  の異なるいずれの条件においても、 $F_p$  の増大に伴い  $f$  が低下していることが確認できる。これに対し、同一ポンプ光エネルギー密度  $F_p$  での  $f$  の SiN 中間層厚  $x$  に対する依存性に着目すると、今回測定を行った条件範囲では、 $x$  の増大に対し  $f$  も最大で約 15% 程度増大していることが



確認できる。このことは、SiN 中間層厚  $x$  の増大により  $B$  層の温度上昇が抑制されたことを意味しているが、SiN 中間層厚  $x$  に対する  $f$  の差異は、初期減磁量より見積もられる電子温度上昇の比と比較して小さい。以上より、誘電体中間層の層厚を制御することで金属層間での電子系のエネルギー散逸を変化させることができ、電子系－格子系平衡化後における各金属磁性層間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。

## 7.5. まとめ

本章では、磁性薄膜試料の多層化による媒体の熱応答特性の制御性向上を目的とし、金属層間に誘電体層を挿入した典型的金属多層薄膜構造を対象に、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過程ならびに各層内・層間のエネルギー散逸の過程について、解析検討を行った。誘電体中間層により電気伝導が分断された各 GdFeCo 金属磁性層では、超短パルス光からのエネルギー吸収量差により電子温度上昇に起因した減磁の大きさが大きく異なり、電子系－格子系のエネルギー平衡化後も各層は異なる温度状態をとる。そして格子系を介した各層間のエネルギー平衡化には数 100 ps を要することを明らかとした。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、誘電体中間層の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磁性層間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。

## 参考文献

- 7-1) J.-Y. Bigot, M. Vomir, and E. Beaurepaire: *Nature Phys.* **5**, 515 (2009).
- 7-2) T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: *J. Magn. Soc. Jpn.* **36**, 82 (2012).
- 7-3) J. C. Slonczewski: *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996).
- 7-4) J. Hohlfeld, Th. Gerrits, M. Bilderbeek, Th. Rasing, H. Awano, and N. Ohta: *Phys. Rev. B* **65**, 012413 (2001).
- 7-5) T. Katayama and K. Hasegawa: *Proc. 4th Int. Conf. Rapidly Quenched Metals*, Sendai, 915 (1981).
- 7-6) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (S1), 273 (1987).
- 7-7) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).
- 7-8) M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot: *Phys. Rev. Lett.* **94**, 237601 (2005).
- 7-9) C. D. Stanciu, A. Tsukamoto, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Kirilyuk, A. Itoh, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217204 (2007).

## 第 8 章 GdFeCo 多層薄膜における

### 磁化ダイナミクスへの磁気交換結合の作用

#### 8.1. はじめに

前章では、誘電体中間層を挿入することで磁性層間の磁気交換結合を分断した GdFeCo 二層膜について、その減磁・回復過程及び磁化歳差運動の層分離計測法を提案・適用することで、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と磁化ダイナミクスについて検討を行った。その結果、各層内で電子系－格子系の温度状態が平衡化した後も二磁性層の温度状態は数 100 ps に渡り異なった状態を示すこと、そして各磁性層の磁化ダイナミクスは単層の GdFeCo 薄膜と同様、独立に扱えることが明らかとなった<sup>8-1)</sup>。

一方、第 4 章において述べたように、副格子磁化が反平行に交換結合したフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜においては、副格子を構成する強磁性 (フェロ磁性) 材料の磁化ダイナミクスとは大きく異なり、副格子の角運動量が打ち消し合い正味の角運動量が消失する角運動量補償点の近傍において、歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  が著しい増大傾向を示す<sup>8-2), 8-3)</sup>。合金内部における副格子磁化の反平行磁気交換結合が磁性層全体の磁化ダイナミクスに対し影響を及ぼすことは上述の通りであるが、多層構造試料においても合金内部と同様に、層間での磁気交換結合が磁化ダイナミクスに対し影響を及ぼすことが期待される。すなわち、磁気特性の異なる複数の磁性層を積層し磁気交換結合させることで、薄膜試料全体における磁化動特性を制御できる可能性を示している。そのため、実デバイスへの応用のためには、第 5 章及び第 7 章において述べた記録媒体における熱応答特性の制御性向上のみでなく、磁気交換結合した多層膜化による磁化動特性の制御性向上も求められる。しかしながら、単

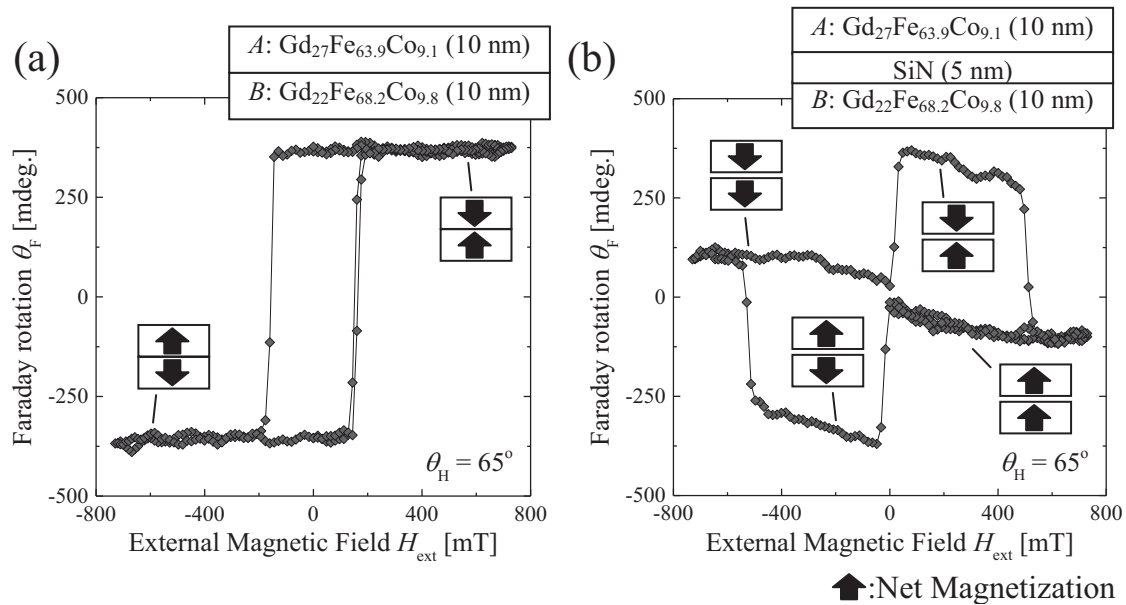
層磁性膜との磁化動特性の差異について、理解は十分ではない。

本章では、単層膜では得られない磁化動特性の多層膜化による発現を目的とし、磁気交換結合をした GdFeCo 多層薄膜試料における磁化ダイナミクスを測定し、磁気交換結合を分断した多層薄膜試料における前章までの測定結果と比較を行う。そして、さらなる詳細な理解のため、Gd / FeCo 超格子薄膜についても磁化ダイナミクスを測定し、傾向について単層のフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜との比較を行う。

## 8.2. GdFeCo 交換結合二層膜における磁化ダイナミクス

本節では、磁気特性が異なる 2 つの磁性層が層間で磁気交換結合し、正味磁化  $M_{\text{net}}$  が反平行結合したフェリ磁性 GdFeCo 交換結合二層膜を対象とし、その磁化ダイナミクスを検討する。磁化ダイナミクスの測定には、中心波長 800 nm、パルス幅 90 fs の Ti: Sapphire パルスレーザーを光源とした全光ポンプ・プローブ法を用いた。歳差運動を励起するポンプ光は、BBO 結晶を用い中心波長 400 nm に変換して使用した。外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は試料膜面法線より  $65^\circ$  傾けて印加し、室温にて測定を行った。多層構造の薄膜試料全体における磁化の応答を膜厚方向に対し均等に検出するため、試料を透過したプローブ光の磁気光学 Faraday 効果の旋光角の変化 (Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$ ) について、その時間発展を計測した。

測定試料は、マグネトロンスパッタ法にて作製した SiN (60 nm) / A 層:  $\text{Gd}_{27}\text{Fe}_{63.9}\text{Co}_{9.1}$  (10 nm) / B 層:  $\text{Gd}_{22}\text{Fe}_{68.2}\text{Co}_{9.8}$  (10 nm) / SiN (5 nm) /  $\text{Al}_{90}\text{Ti}_{10}$  (10 nm) / glass sub. を用いた。図 8-1 (a) に本 GdFeCo 交換結合二層膜の、図 8-1 (b) に磁性層間に SiN 中間層 5 nm を挿入し磁性層間の磁気交換結合を分断した GdFeCo 二層膜試料の、全光ポンプ・プローブ測定セットアップにおいて測定した Faraday ヒステリシスループを示す (図 8-1 (b) は前章図 7-2 (b) の再掲)。図 8-1 (a) に示



↑:Net Magnetization  
**図 8-1** 全光ポンプ・プローブ法による測定セットアップで測定した  
 (a) GdFeCo 交換結合二層膜及び (b) 誘電体中間層を有する  
 GdFeCo 二層膜の Faraday ヒステリシスループ

した本 GdFeCo 交換結合二層膜試料は室温にて、 $A$  層は希土類磁化  $M_{RE}$  が遷移金属磁化  $M_{TM}$  に対して優勢 (RE-rich)、 $B$  層は  $M_{TM}$  が  $M_{RE}$  に対して優勢 (TM-rich) の組成であり、主に  $M_{TM}$  に対応する Faraday 回転角  $\theta_F^{8-4)-8-6)}$  の大きさを図 8-1 (b) と比較することで、外部磁界  $H_{ext}$  の印加範囲において各磁性層の正味磁化  $M_{net}$  が常に反平行結合していることが確認できる。なお、図中に挿入した矢印は、各磁性層における正味磁化  $M_{net}$  の方向を表している。

このように磁気特性の異なる 2 つのフェリ磁性 GdFeCo 層を交換結合させた試料 (図 8-1 (a)) における、全光ポンプ・プローブ法による磁化歳差運動の計測結果と、測定結果に対し Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式に基づくフィッティングを行って求めた歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  の外部印加磁界  $H_{ext}$  に対する依存性を図 8-2 に示す。ここで、ポンプ光の試料表面におけるエネルギー密度  $F_p$  は  $0.2 \text{ mJ/cm}^2$  一定とした。結果より、外部印加磁界  $H_{ext} = 160 \text{ mT} \sim 730 \text{ mT}$  の測定範囲において、いずれの磁界印加条件においても磁化

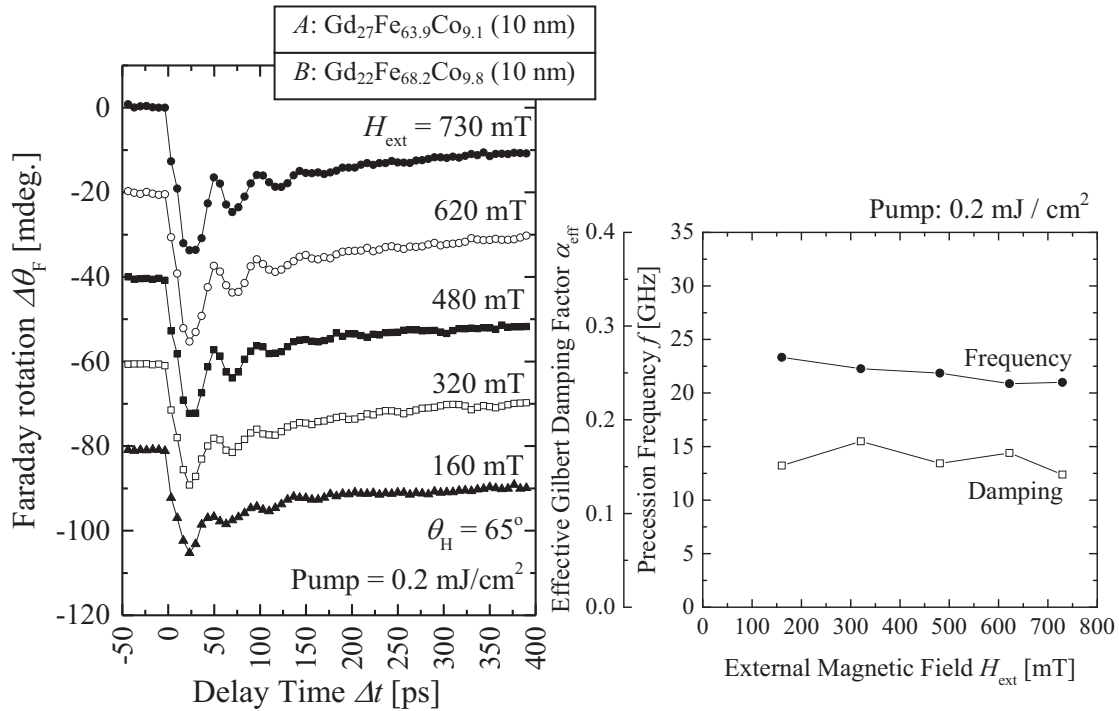


図 8-2 全光ポンプ・プローブ法による GdFeCo 交換結合二層膜の磁化歳差運動計測結果の外部印加磁界  $H_{ext}$  依存性 (ポンプ光エネルギー密度 =  $0.2 \text{ mJ/cm}^2$ ) と歳差運動周波数  $f$ ・実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  のフィッティング結果

歳差運動による Faraday 回転角変化  $\Delta\theta_F$  の減衰振動成分を確認することが出来る。ここで、 $\Delta\theta_F$  の振幅は  $H_{ext}$  の減少に伴い小さくなっているが、歳差運動周波数  $f$  は  $22 \sim 24 \text{ GHz}$  と、ほぼ一定であった。歳差運動周波数  $f$  は、第 3 章でも述べたように実効磁気回転比  $\gamma_{eff}$  と内部実効磁界  $H_{eff}$  の積に比例するが、図 8-2 の結果からは  $f$  の  $H_{ext}$  に対する依存性は殆ど確認できない。また、このときの実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  は約  $0.14$  であった。

次に、ポンプ光の試料表面におけるエネルギー密度  $F_p$  を  $0.8 \text{ mJ/cm}^2$  としたときの測定結果を、図 8-3 に示す。このとき、 $f$  は  $9 \sim 30 \text{ GHz}$ 、 $\alpha_{eff} \sim 0.2$  であり、 $f$  が  $H_{ext}$  に対し明確な依存性を示すことを確認した。いずれのポンプ光エネルギー密度  $F_p$  の条件においても測定した信号にうなりは観察されず、歳差運動をする際にも二磁性層の磁化が強く結合していると考えられる。

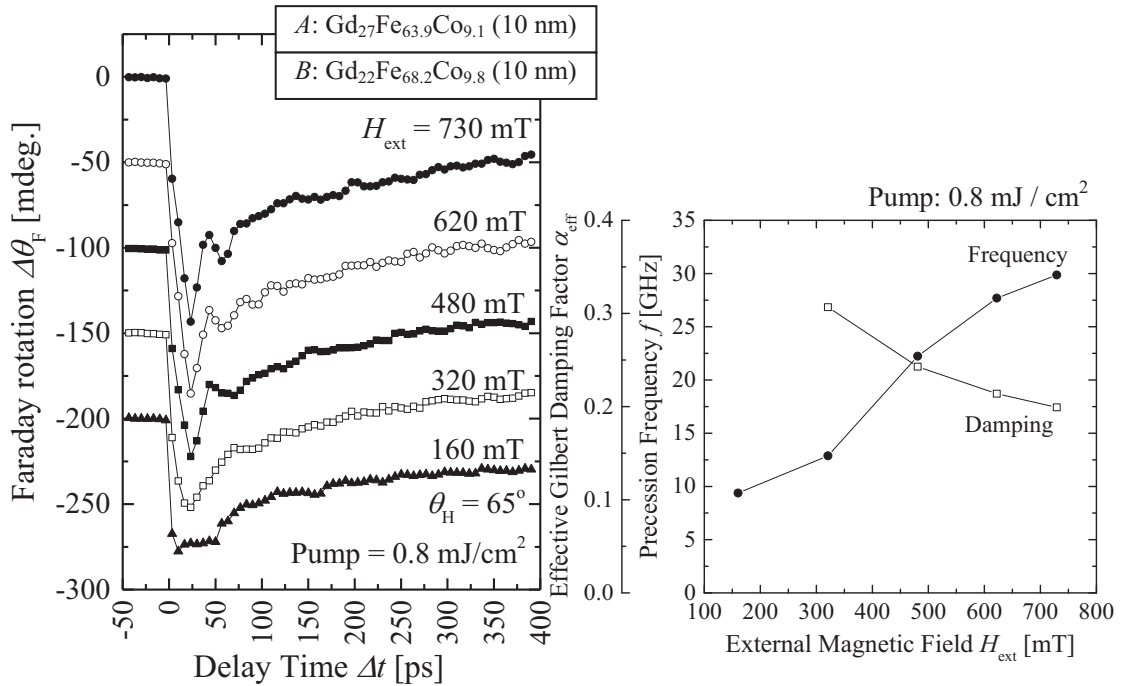


図 8-3 全光ポンプ・プローブ法による GdFeCo 交換結合二層膜の磁化歳差運動計測結果の外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  依存性 (ポンプ光エネルギー密度 =  $0.8 \text{ mJ/cm}^2$ ) と歳差運動周波数  $f$ ・Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  のフィッティング結果

ここで、歳差運動周波数  $f$  の外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  に対する依存性の傾向が、ポンプ光エネルギー密度  $F_p$  によって大きく異なる原因として、ポンプ光照射による試料の背景温度上昇を考える。フェリ磁性体である GdFeCo 合金の磁性は第 2 章で述べた通りであり、RE-rich (室温において  $M_{\text{RE}} > M_{\text{TM}}$ ) である A 層と TM-rich (室温において  $M_{\text{TM}} > M_{\text{RE}}$ ) である B 層の各副格子磁化と正味磁化  $M_{\text{net}}$  の関係は模式的に図 8-4 のように表されると考えられる。図中①と②は照射したポンプ光の強度の違いによる背景温度上昇の違いを表している。まず、ポンプ光強度が低い場合について考える。反平行結合した各磁性層の正味磁化  $M_{\text{net}}$  の大きさが同程度であるために膜全体の磁化  $M_{\text{total}}$  ( $M_{\text{net}}^A - M_{\text{net}}^B$ ) 及び異方性磁界  $H_a$  を減ずる自己減磁界 (反磁界)  $H_d$  が減少し、 $H_a$  が試料内の実効磁界  $H_{\text{eff}}$  に対し支配的となるために、ポンプ光エネルギー密度  $F_p = 0.2 \text{ mJ/cm}^2$  の励起条件において歳差

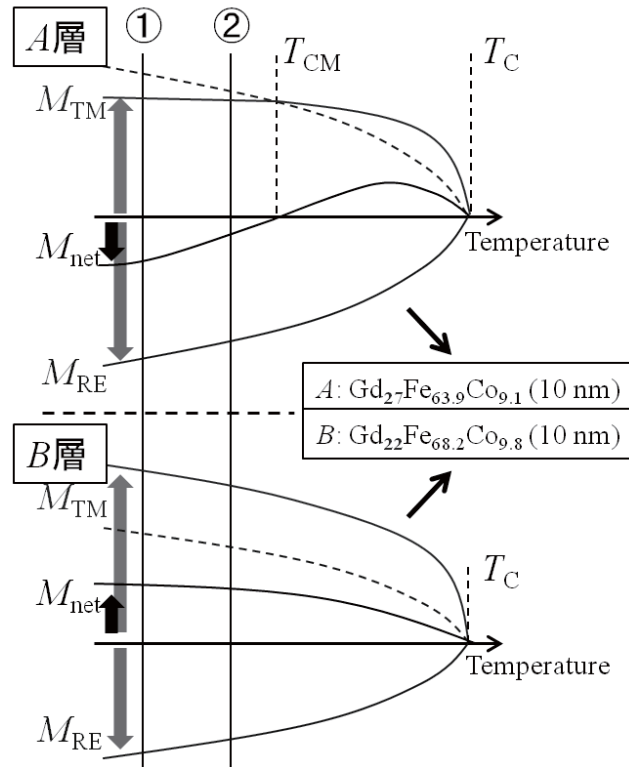


図 8-4 GdFeCo 交換結合二層膜における磁化状態と背景温度の関係

運動周波数  $f$  の外部磁界  $H_{\text{ext}}$  に対する依存性が殆ど表れなかったと考えられる。一方、ポンプ光強度が高い場合、背景温度の上昇に伴い膜全体の磁化  $M_{\text{total}}$  及び自己減磁界  $H_{\text{d}}$  が増大すると考えられる。その結果、試料内の実効磁界  $H_{\text{eff}}$  に対する外部磁界  $H_{\text{ext}}$  の相対的寄与が増大する。そのために、ポンプ光エネルギー密度  $F_{\text{p}} = 0.8 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  の励起条件においては歳差運動周波数  $f$  が外部磁界  $H_{\text{ext}}$  に対し明確な依存性を示したと考えられる。なお、第 5 章までの検討及びドイツ BESSY II の I. Radu らによる XMCD 元素識別計測の報告<sup>8-7)</sup>より、サブ ps で減磁が完了する遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  に対して希土類磁化  $M_{\text{RE}}$  の減磁は遅れるものの、各副格子磁化はともに  $\Delta t \sim 3 \text{ ps}$  程度で減磁が完了し、遅くとも  $\Delta t \sim 6 \text{ ps}$  以降ではコレクティブモードの磁化歳差運動が開始していることが明らかとなっている。そのため、磁化歳差運動を観察している時間領域では、各副格子磁化における



減磁の時定数差を考慮せずに、従来検討されてきたフェリ磁性材料における磁化の温度依存性の議論が適用可能である。

以上の考察結果は、交換結合多層膜における磁化歳差運動の挙動は、各磁性層の磁化状態に対し大きく依存することを示している。つまり、磁気特性の異なる磁性層を積層させた交換結合多層膜構造をとることで、各磁性層単層とは異なる磁化ダイナミクスが発現することを示唆するものである。

上記についてさらなる詳細な検討を行うため、全磁化量  $M_{\text{total}}$  の温度依存性 (50~400 K) を SQUID-VSM により測定した結果を図 8-5 に示す。図中のヒステリシスループは、後述のポンプ・プローブ測定条件にて 100 K 及び 400 K で測定した Faraday ヒステリシスループである。結果より、275 K 付近において 2 つの磁性層の磁化が打ち消し合い試料全体の磁化  $M_{\text{total}}$  が消失することが確認できる (この温度を全磁化補償温度  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$  と定義する)。上記の磁化ダイナミクス計

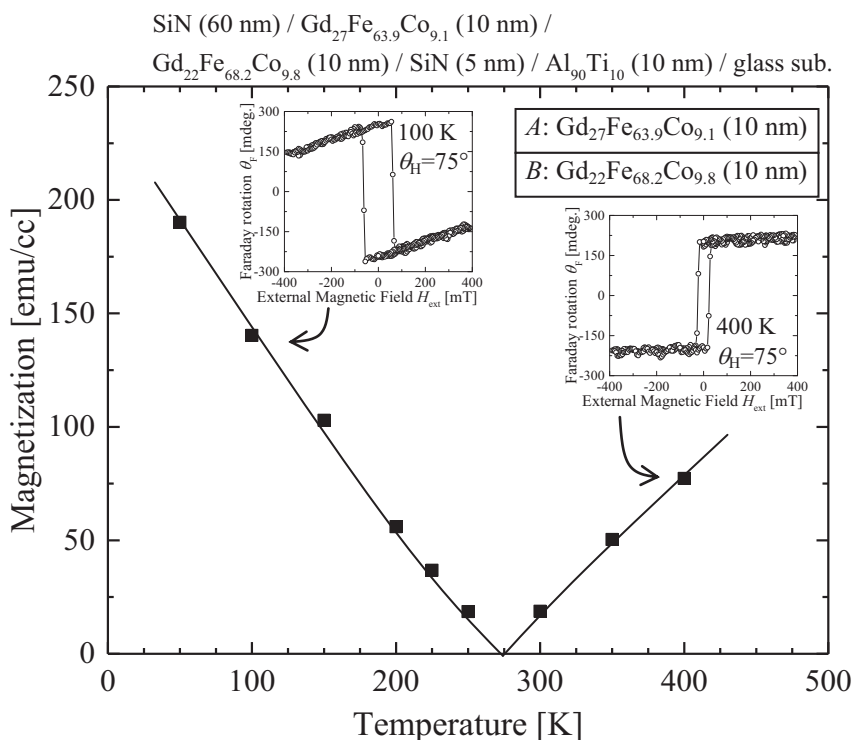


図 8-5 GdFeCo 交換結合二層膜の SQUID-VSM により測定した磁化の温度特性と Faraday ヒステリシスループ

測は室温 ( $\sim 297$  K) で行っており, 全磁化補償温度  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$  と近い。このことは, 先ほどの背景温度の違いによる定性的な検討を裏付けるものであり, 単一のヒステリシスループとして磁化が応答する交換結合膜の磁化ダイナミクスは, 交換結合した試料全体の磁化として扱うことが可能であることを意味している。

次に, 交換結合二層膜においても単層のフェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料と同様に, 全磁化補償温度  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$  の近傍において試料内全体での角運動量補償現象が生じ, 実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  や歳差運動周波数  $f$  の増大が生じるのかを検証するため, 本 GdFeCo 交換結合二層膜試料における磁化ダイナミクスの温度依存性を, 全光ポンプ・プローブ法にて測定する。光源には中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅) のレーザーを用いており, プローブ光は BBO 結晶を用いて中心波長 400 nm に変換して実験を行った。外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は試料膜面法線より  $75^\circ$  傾けて印加し, ポンプ光の試料表面におけるエネルギー密度は  $1.1 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  一定とした。また, 試料はクライオスタット (Oxford Instruments 社製 Microstat He Rectangle Tail) 内に設置し,  $80 \sim 500$  K の温度範囲で制御を行った。 $H_{\text{ext}} = 278 \text{ mT}$  一定としたときの各温度における測定結果を図 8-6 に示す。図中の補助線は LLG 方程式に基づくフィッティングの結果である。GdFeCo 単層試料における測定結果と同様, 試料内全磁化補償温度  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$  を境に遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  に起因した  $\Delta\theta_{\text{F}}$  の減磁による変化の方向が逆符号となること,  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$  近傍において歳差運動による減衰振動成分の振幅が小さくなることを確認できる。本結果に対し LLG 方程式に基づくフィッティングを行うことで求めた, 歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の温度依存性を図 8-7 に示す。結果より,  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$  ( $\sim 275$  K) 近傍  $\sim 320$  K の範囲において歳差運動周波数  $f$  が約 27 GHz にまで増大していることが確認できる。一方, 実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  は 340 K において最大となり, その値は約 0.26 であった。

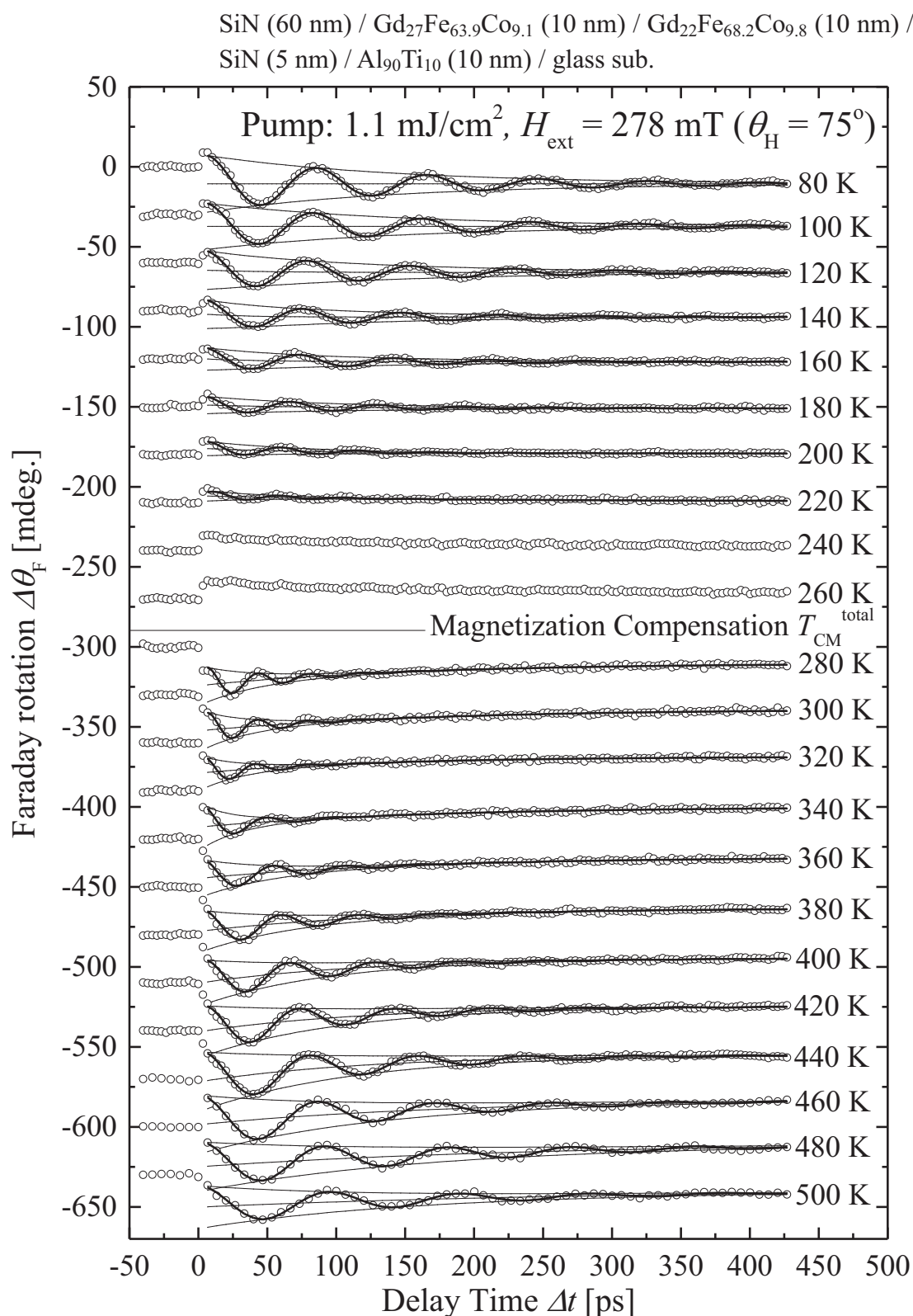


図 8-6 GdFeCo 交換結合二層膜における  
磁化ダイナミクスの温度依存性

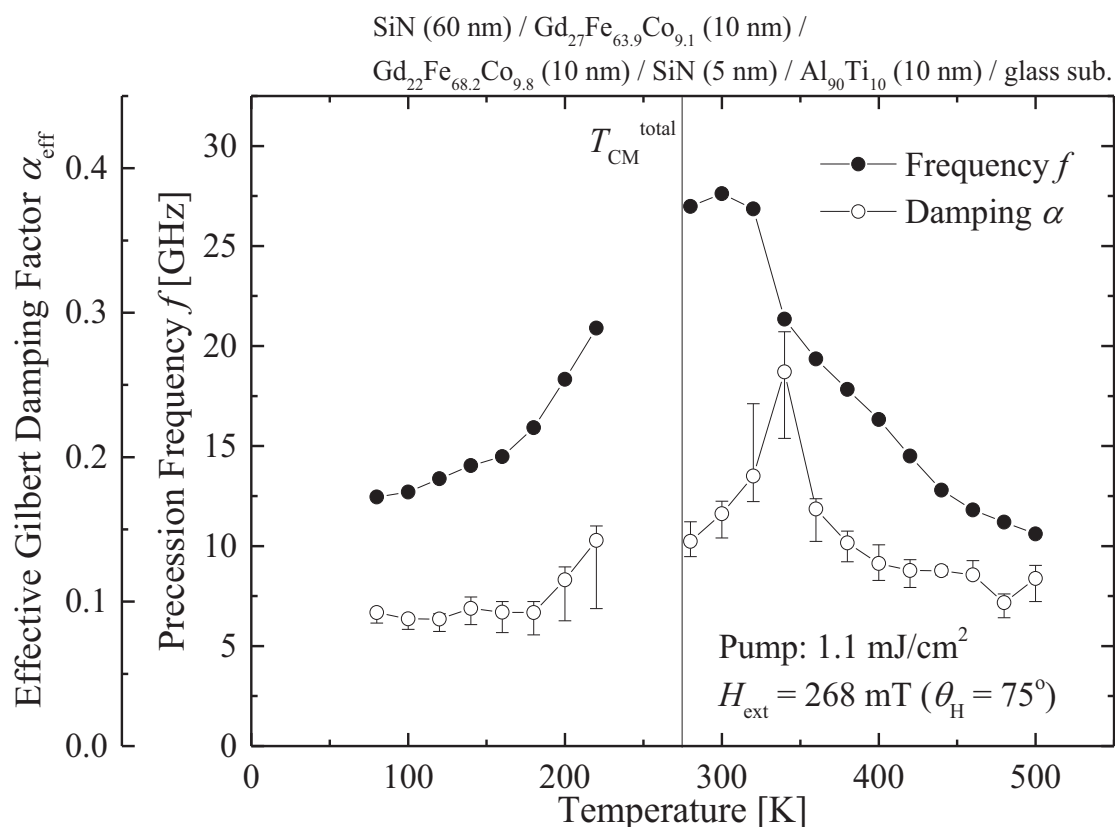


図 8-7 GdFeCo 交換結合二層膜における歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の温度依存性

ここで、第 4 章 4.3 節で示した単層 GdFeCo フェリ磁性薄膜の測定結果と GdFeCo 交換結合二層膜における上記測定結果について、図 8-8 のように比較を行った。磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  (交換結合膜においては  $T_{\text{CM}}^{\text{total}}$ ) は試料の組成によって異なるため、横軸の温度は  $T_{\text{CM}}$  を基準とした。いずれの試料においても、 $T_{\text{CM}} + 50 \text{ K}$  付近にて実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  が同様の増大傾向を示していることが確認できる。このことは、各層の正味磁化が反平行結合し単一のヒステリシスループとして磁化が応答する GdFeCo 交換結合二層膜においても、試料全体で単層 GdFeCo と同様の角運動量補償現象が生じていることを意味し、磁化の動特性は交換結合した磁性層全体における磁化状態に依存するといえる。しかしながら、交換結合二層膜における角運動量補償温度  $T_{\text{CA}}$  近傍での  $\alpha_{\text{eff}}$  及び  $f$  の増大は単層 GdFeCo 薄膜と比較して小さい。これは、二磁

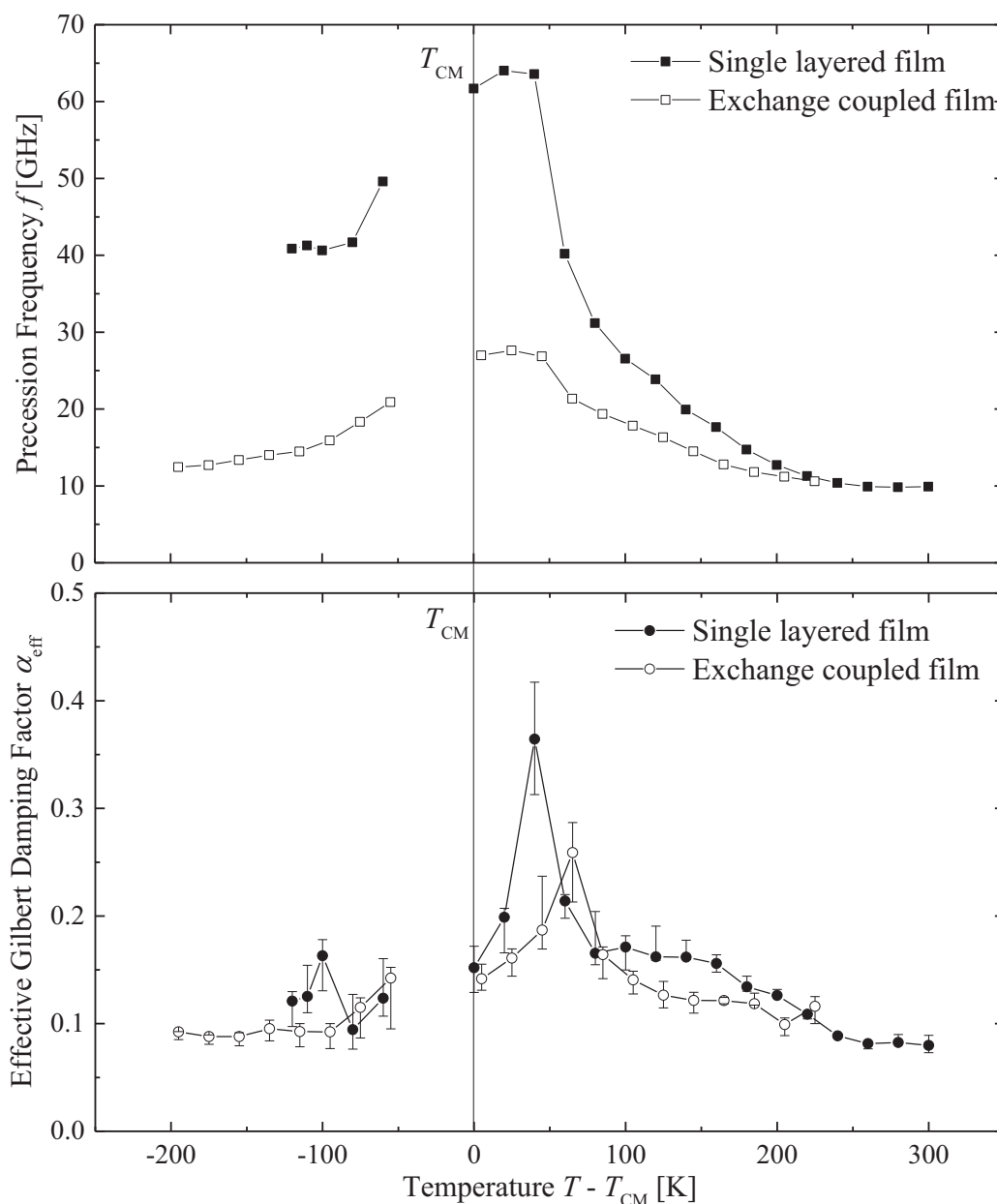


図 8-8 GdFeCo 交換結合二層膜と GdFeCo 単層薄膜における歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  の温度依存性の比較

性層間における磁気交換結合が単層合金薄膜内における副格子間の磁気交換結合と比較して弱いためと考えられる。このように、層間で交換結合した多層構造膜とすることで単層の磁性薄膜とは全体として異なる動特性を得ることが可能と考えられ、磁化ダイナミクスの制御に応用できる可能性を示している。

### 8.3. Gd / FeCo 超格子薄膜における磁化ダイナミクス

前節では, GdFeCo 交換結合二層膜における磁化ダイナミクスの温度依存性より, 層間の交換結合を介して単層 GdFeCo フェリ磁性薄膜試料と同様の角運動量補償現象が生じ, 歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の増大が生じることを明らかとした。本節では, Gd 層と FeCo 層を交互に多層積層した Gd / FeCo 超格子薄膜試料における磁化ダイナミクスの測定を行うことで, 層間の磁気交換結合の作用についてさらなる検討を行う。

測定試料は, マグネトロンスパッタ法にて作製した SiN (60 nm) / [Gd (0.5 nm) / Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub> (0.5 nm)]<sub>20</sub> / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub. を用いた。後述のポンプ・プローブ計測用セットアップにて測定した, 本試料の温度  $T = 300$  K における Faraday ヒステリシスループを図 8-9 に示す。ヒステリシスループより, 本試料が垂直磁化膜であることが確認できる。また, 遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  と対応する Faraday ヒステリシスループの向きと外部印加磁界  $H_{\text{ext}}$  の関係より, 300 K において遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  優勢であることが確認できる。次に, SQUID-VSM により測定した, 本試料における正味磁化  $M_{\text{net}}$  の温度依存性を図 8-10 に示す。結果より, 単層のフェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料と同様に磁化補償現象が生じ, 磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  が 150 K 付近に存在することを確認できる。このことから, Gd / FeCo 超格子構造多層膜における Gd 層の磁化  $M_{\text{RE}}$  と FeCo 層の磁化  $M_{\text{TM}}$  は層間の交換結合により互いに概ね反平行結合していると考えられるが, Gd : FeCo の体積比が 1 : 1 (GdFeCo 合金に換算すると Gd 組成約 26 at. %相当) である GdFeCo 合金薄膜 SiN (60 nm) / Gd<sub>26</sub>Fe<sub>64.7</sub>Co<sub>9.3</sub> (20 nm) / SiN (5 nm) / Al<sub>90</sub>Ti<sub>10</sub> (10 nm) / glass sub. の第 2 章図 2-6 で示した  $T_{\text{CM}} \sim 410$  K と比べ低温側へシフトしており, 磁性に寄与している Gd 磁化  $M_{\text{RE}}$  が合金薄膜と比べ実効的に減少しているといえる。

本試料の磁化ダイナミクスを, 中心波長 800 nm, パルス幅 90 fs (半値全幅) の

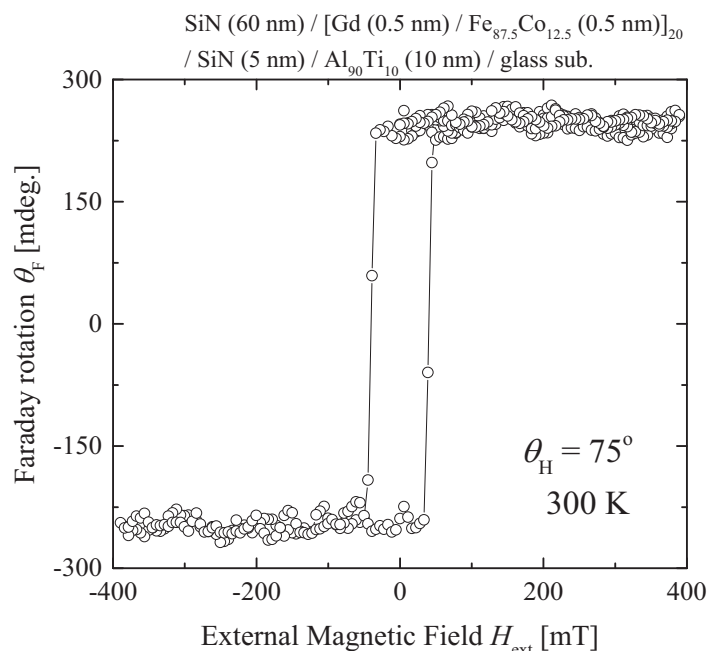


図 8-9 Gd/FeCo 超格子薄膜試料の測定温度 300 K における Faraday ヒステリシスループ

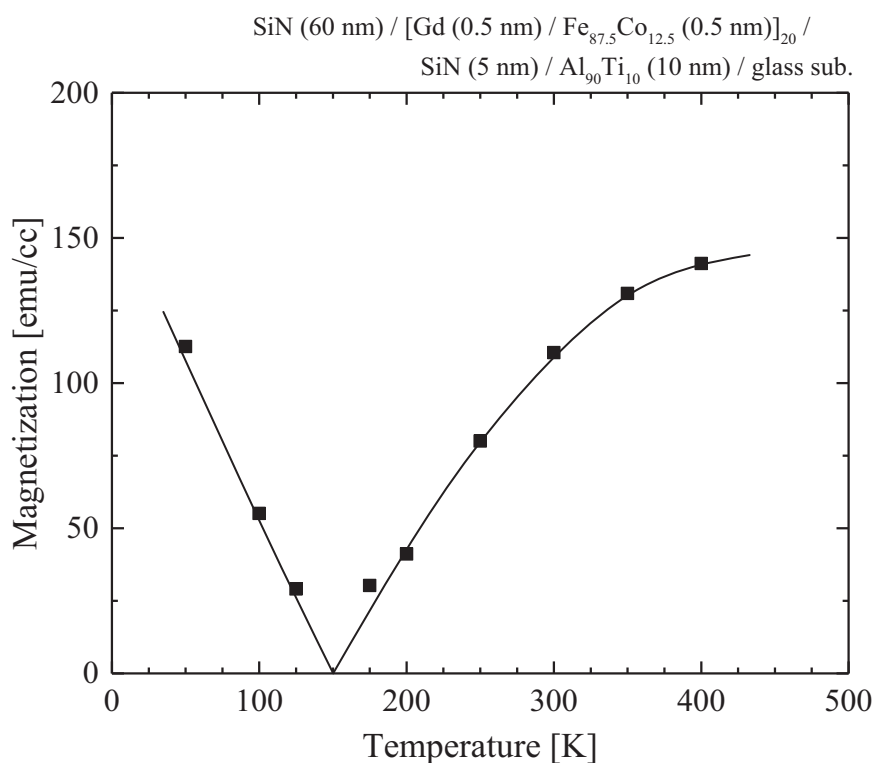


図 8-10 SQUID-VSM にて測定した Gd/FeCo 超格子薄膜試料における正味磁化の温度依存性

パルスレーザーを光源としたポンプ・プローブ法により計測した。プローブ光は BBO 結晶により中心波長 400 nm に変換して用い、外部磁界  $H_{\text{ext}}$  は膜面法線に対し 75°傾け印加した。また、測定試料の温度  $T$  は、クライオスタット (Oxford Instruments 社製 Microstat He Rectangle Tail) 中に設置し、80~500 K の範囲で制御を行った。 $H_{\text{ext}} = 278$  mT, ポンプ光エネルギー密度  $1.1$  mJ/cm<sup>2</sup> 一定としたときの磁化ダイナミクスについて、温度依存性を上記条件にて測定した結果を図 8-11 に示す。図中の補助線は、測定結果に対し LLG 方程式に基づくフィッティングを行った結果である。測定結果より、第 4 章で示した単層フェリ磁性 GdFeCo 薄膜試料の測定結果と同様に、磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  を境に遷移金属磁化  $M_{\text{TM}}$  の減磁に対応する  $\Delta\theta_{\text{F}}$  の変化の符号が反転していることが確認できる。また磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  に近づくにつれ、歳差運動に対応する減衰振動成分の振幅が減少していることを確認できる。これは、 $M_{\text{net}}$  の減少に伴って外部磁界  $H_{\text{ext}}$  から受けるトルクが小さくなるためである。また、高温域において歳差運動に対応する減衰振動成分の振幅が減少しているのは、 $M_{\text{TM}}$  の減少による Faraday 回転角  $\theta_{\text{F}}$  の減少及び、垂直磁気異方性の低下に起因して磁化の傾きが増大することにより、歳差運動の膜面垂直方向射影成分が小さくなるためである。

測定した温度範囲において、いずれの条件でも、磁化歳差運動に起因した  $\Delta\theta_{\text{F}}$  の減衰振動成分が明確に観察できており、異なる周波数成分の信号を合成した際に現れるうなりは観察されていない。このことは、反平行に磁化が交換結合した Gd 磁性層と FeCo 磁性層からなる超格子構造多層膜において、測定領域 (プローブ光の照射スポット内) の磁化が歳差運動励起後も強く結合し、一斉に回転していることを意味している。

これら磁化歳差運動の測定結果に対して LLG 方程式に基づくフィッティングを行い求めた、歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の温度依存



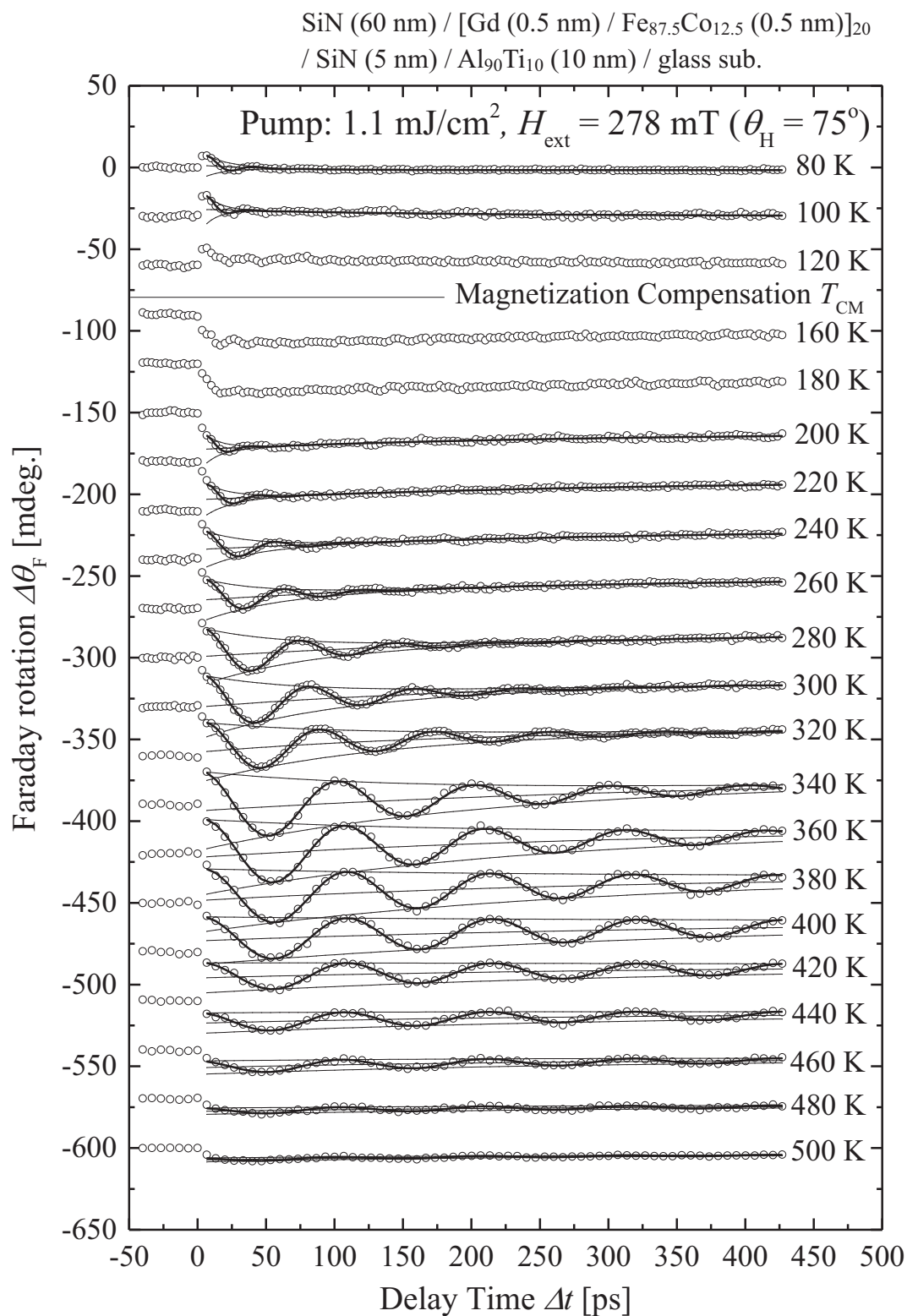


図 8-11 Gd / FeCo 超格子薄膜試料における磁化ダイナミクスの温度依存性

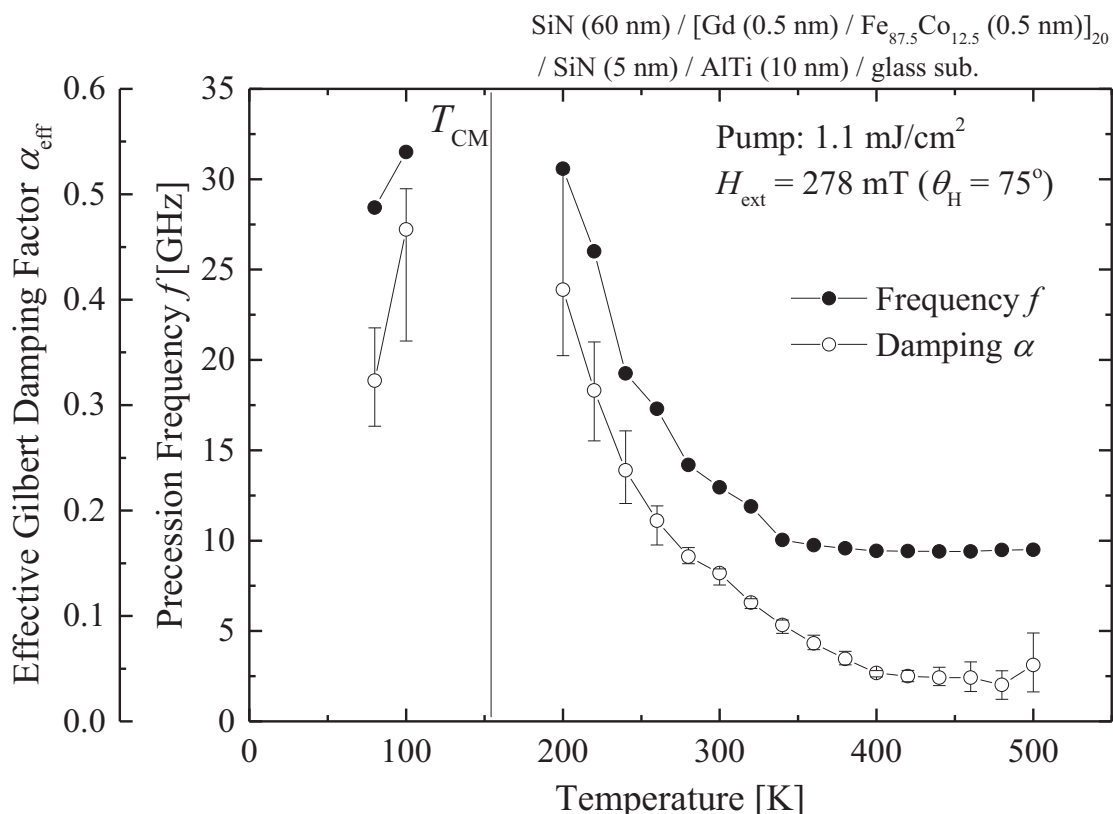


図 8-12 Gd / FeCo 超格子薄膜試料における歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の温度依存性

性を図 8-12 に示す。結果より、磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  の近傍において  $f$  及び  $\alpha_{\text{eff}}$  が共に増大傾向を示していることが確認できる。

ここで、第 4 章 4.3 節で示した単層 GdFeCo フェリ磁性薄膜の測定結果と Gd / FeCo 超格子構造多層膜における上記測定結果について、図 8-13 のように比較を行った。磁化補償温度  $T_{\text{CM}}$  は試料の組成によって異なるため、横軸の温度は  $T_{\text{CM}}$  を基準とした。いずれの試料においても  $T_{\text{CM}}$  近傍において実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  が増大する傾向を確認できるが、Gd / FeCo 超格子構造多層膜においては、 $\alpha_{\text{eff}}$  及び  $f$  の増大がピークとなる温度と  $T_{\text{CM}}$  の間において  $\alpha_{\text{eff}}$  及び  $f$  の減少は確認できず、単層の GdFeCo 薄膜の結果のように  $T_{\text{CA}} > T_{\text{CM}}$  の関係にあるかは明確ではない。各副格子を構成する磁化同士が反平行結合した系において  $T_{\text{CM}} \doteq T_{\text{CA}}$  ということは、第 4 章 4.2 節の定性的温度・組成依存性

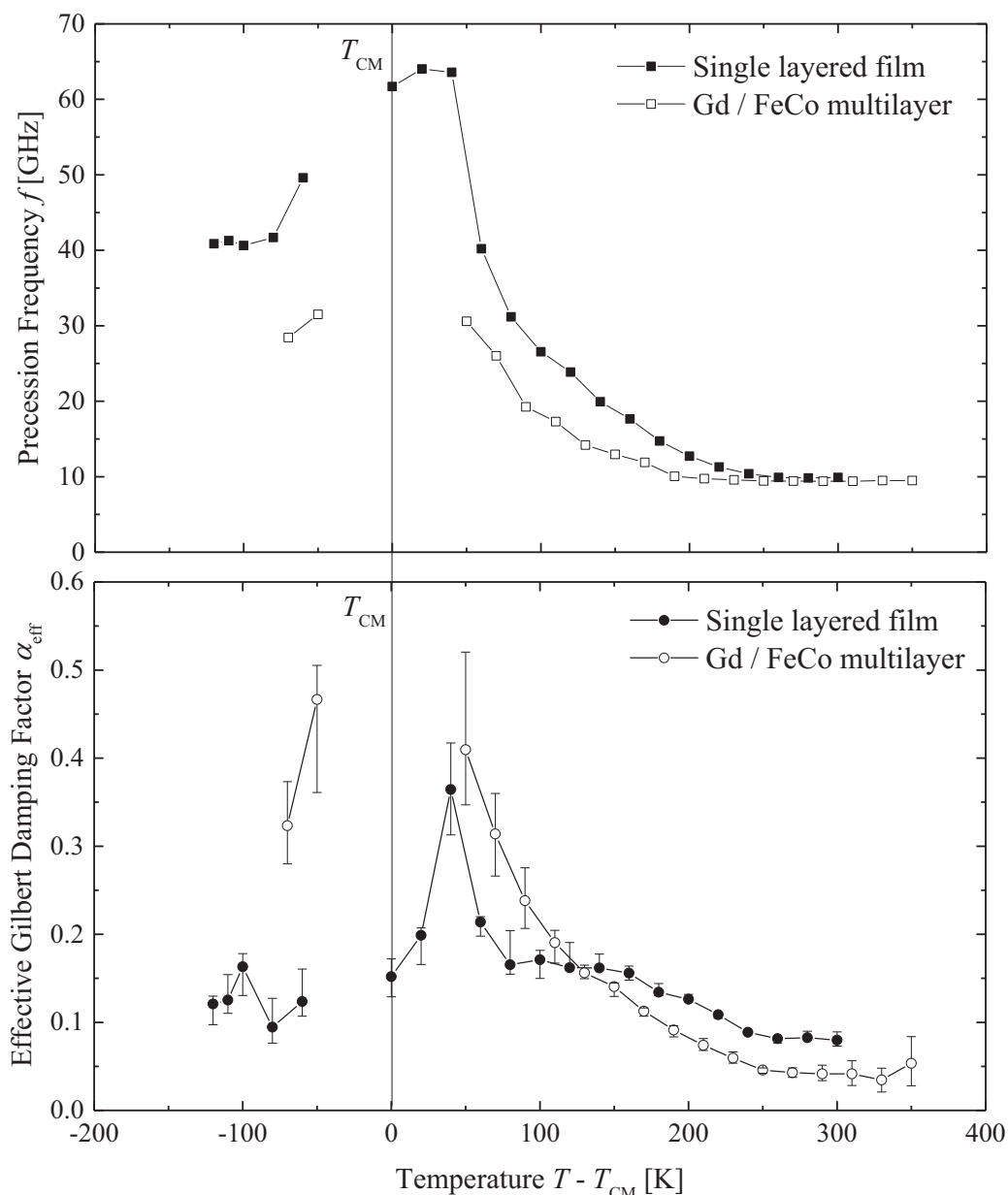


図 8-13 Gd / FeCo 超格子薄膜と GdFeCo 単層薄膜における歳差運動周波数  $f$  及び実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  の温度依存性の比較

で述べたように、実効磁気回転比  $\gamma_{eff}$  の温度に対する変化が小さい、すなわち Gd 層と FeCo 層における磁気回転比  $\gamma$  ( $g$  係数と比例) が実効的にほぼ等しいことを意味すると考えられる。このことは、単層のフェリ磁性 GdFeCo アモルファス合金薄膜中と比較し、Gd / FeCo 超格子薄膜試料における各副格子の  $g$  係数が実効

的に異なっていることを意味する。

これら検討より、各層の正味磁化が反平行結合するよう層間で交換結合させたフェリ磁性 GdFeCo 合金二層膜とさらに異なる磁化動特性を、超格子薄膜構造とすることで得ることが可能と考えられ、磁化ダイナミクスの制御に応用できる可能性を示している。

#### 8.4. まとめ

本章では、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 超格子構造多層膜試料の磁化ダイナミクスについて単層磁性薄膜試料との比較検討を行った。GdFeCo 交換結合二層膜においては、各層間の磁化が打ち消し合い試料全体の磁化が補償する全磁化補償温度  $T_{CM}^{total}$  から +50 K 程度の温度領域において、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{eff}$  及び歳差運動周波数  $f$  が単層のフェリ磁性 GdFeCo 薄膜と同様に増大傾向を示すことが明らかとなった。このことは、第 4 章で示した角運動量補償現象が交換結合した二層間においても生じることを意味する。しかし、その近傍における  $\alpha_{eff}$  および  $f$  の増大幅は単層 GdFeCo 薄膜と比較して小さい。一方、Gd / FeCo 超格子構造多層膜においては、 $\alpha_{eff}$  および  $f$  の増大する温度領域が磁化補償温度  $T_{CM}$  近傍であり、温度に対する傾向が異なることが明らかとなった。これら結果より、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。

## 参考文献

- 8-1) T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: *J. Magn. Soc. Jpn.* **36**, 82 (2012).
- 8-2) C. D. Stanciu, A. Tsukamoto, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Kirilyuk, A. Itoh, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217204 (2007).
- 8-3) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh: *J. Appl. Phys.*, **109**, 07D302 (2011).
- 8-4) T. Katayama and K. Hasegawa: *Proc. 4th Int. Conf. Rapidly Quenched Metals*, Sendai, 915 (1981).
- 8-5) Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, and S. Uchiyama: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (S1), 273 (1987).
- 8-6) S. Honda and M. Yoshiyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 1687 (1988).
- 8-7) I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A. V. Kimel: *Nature* **472**, 205 (2011).

## 第9章 総括

### 9.1. 結論

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。

第1章では本研究の背景と目的について述べ、第2章では対象とした希土類遷移金属アモルファス合金フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁気特性、磁気光学効果との対応、そして測定試料の作製について述べた。また第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型のポンプ・プローブ法による磁化ダイナミクスの測定法について述べた。

そして第4章では、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における磁化動特性の温度及び組成依存性について測定を行った。結果、GdFeCo 薄膜の磁化動特性は、温度及び組成に対し強い依存性を有しており、反平行結合した各副格子磁化の角運動量が互いに打ち消し合い正味の角運動量が消失する角運動量補償温度・組成の近傍において、これまでマクロスピンモデルにより理論的に予測されていた実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  の著しい増大を示すことを、実験的に明らかとした。そして、室温において測定した各組成の GdFeCo の  $\alpha_{\text{eff}}$  及び  $f$  を用い、一斉磁化回転・実効磁界一定の仮定のもとで磁化反転緩和時間  $\tau$  の見積もりを行った。結果、測定した組成範囲において  $\tau$  は 10 倍以上変化し、上記角運動量補償点の近傍では、現行のハードディスクドライブに一般的に用いられている CoCrPt 系の記録媒体材料の 10~100 分の 1 程度となった。これは、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の角運動量補償点近傍において、現行のハードディ

スクドライブと比較して 10~100 倍程度高速な磁化反転が実現できる可能性を示すものである。

第5章では、上記フェリ磁性 GdFeCo 薄膜における磁化動特性の温度依存性を高速磁気記録に積極利用するための手法として、フェムト秒オーダーの超短パルス照射による極短時間加熱の利用を提案した。しかし、超短パルス照射により生じる電子温度と格子温度の過渡的非平衡状態における、歳差運動周期よりも短い時間スケールでのフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜の極短時間加熱・減磁過程は、これまで電子温度・格子温度上昇との対応が明らかではなかった。そこで、電子温度と格子温度それぞれに対する応答が明確に異なると予想される、誘電体層と金属放熱層からなる下地の層構成が異なった GdFeCo 薄膜を作製し、その反射率及び磁気光学 Kerr 回転角の変化の時間発展との対応から検討を行った。反射率変化の応答より、GdFeCo 合金薄膜中の電子温度はパルス幅約 90 fs の超短パルス照射後約 0.5 ps で最大となり、電子温度と格子温度は約 1.1 ps で概ね平衡化していると考えられる。それに対して、Kerr 回転角変化の応答から、電子温度と格子温度の平衡化より十分短いサブ ps で減磁が完了し、その量は磁性層及び放熱層からなる連続した金属層の膜厚により決定されることが明らかとなった。このことから、GdFeCo 合金薄膜における磁化の熱磁気特性は格子温度ではなく、電子温度の上昇によって主に決定されることが明らかとなった。そして、外部印加磁界の大きさに対する磁気光学応答の時間発展の依存性から、超短パルス照射から約 6 ps で、強い過渡的非平衡過程を経てコレクティブモード (集団スピンモード) の磁化歳差運動として扱えることが明らかとなった。つまり、この時間スケール以降では、その温度状態と対応した熱磁気特性を利用可能な、一般的に考えられている加熱状態として扱えるようになることが明らかとなった。

これら検討を踏まえ第6章では、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歳差スイッチングが励起可能であることを実証した。室温より高温側の領域に磁化補償温度  $T_{CM}$  及び角運動量補償温度  $T_{CA}$  を有するフェリ磁性 GdFeCo 薄膜に対し、超短パルス光照射によって  $T_{CM}$  を越え  $T_{CA}$  近傍まで到達する極短時間加熱を行うことで、希土類 (Gd) 磁化  $M_{RE}$  と遷移金属 (FeCo) 磁化  $M_{TM}$  の差分である正味磁化  $M_{net}$  を数 ps の時間スケールで逆方向とし、DC 外部磁界印加下において  $T_{CA}$  近傍における高ダンピング特性を利用した高速熱アシスト磁化歳差スイッチングを励起可能であることを示した。磁化歳差運動の1周期目にあたる超短パルス光照射から約 6 ps で、磁化の z 方向射影成分は  $M_z / M = 0$  を越える。このときの歳差運動周波数  $f$  は約 30 GHz と高速であり、超短パルス光照射による極短時間加熱で  $T_{CA}$  近傍まで到達させ、フェリ磁性体の磁化ダイナミクスを高速に制御可能であることを示した。このことは、数 ps の時間領域で副格子を構成する  $M_{RE}$  と  $M_{TM}$  が共に、減磁を完了することを意味する。可視光域の磁気光学効果による本研究での GdFeCo 薄膜の測定結果は、時分解 XMCD 元素識別計測の報告における Fe の応答とも減磁の時定数が概ね一致しており、希土類である Gd の応答は含まれない。しかしながら、上記時分解 XMCD 計測の結果から、Gd の応答は遷移金属である Fe, Co の応答からは遅れるものの、強い過渡的非平衡過程を経て数 ps の時間スケールで磁気交換結合が回復し、Gd, FeCo 共に減磁が完了することが報告されており、上記結果を裏付ける。

このような極短時間の熱磁氣的応答を実デバイスへ応用するためには熱応答特性の制御性向上が求められ、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各層内・層間のエネルギー散逸過程の詳細な理解が不可欠である。そこで第7章では、層間の磁気交換結合が分断された多層膜試料における磁化ダイナミクスの層分離計測法を提案し、誘電体である SiN 中間層により二磁性



層間の磁気交換結合及び電気伝導を分断した GdFeCo 二層膜の測定に適用することで、金属磁性層と誘電体層からなる磁性多層薄膜中の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磁化の応答として層分離計測し、解析検討を行った。結果、上述の電子温度上昇に起因した各 GdFeCo 磁性層の減磁量は、照射した超短パルス励起光の電界強度分布の違いに起因する各層のエネルギー吸収量差及び誘電体中間層の挿入による層間での電子系のエネルギー散逸の抑制作用により、大きく異なることが明らかとなった。そして、各磁性金属層内における電子・格子系の温度平衡化後も、二磁性層は異なる温度状態をとり、格子系を介した層間熱拡散による二磁性層の温度平衡化には数 100 ps を要することを明らかとした。また、磁性層間の磁気交換結合を分断した試料においては、その磁化ダイナミクスを層毎に独立したものとして扱えることを明らかとした。そして、主に電子温度上昇に対応した減磁が生じる数 ps の極短時間領域と、各層内での電子・格子系のエネルギー平衡化後数 100 ps の時間領域における、金属多層膜中のエネルギー散逸過程、それぞれについて金属磁性層間に挿入した誘電体 SiN 中間層の層厚に対する依存性を、各層の磁化の応答から解析検討した。結果、電子系－格子系平衡化後の各磁性金属層における温度上昇比は誘電体中間層厚の増加に伴い増大するものの、電子温度上昇比の差と比較して小さいことが明らかとなった。このことより、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磁性層間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示した。これら検討より、電子系－格子系の過渡的非平衡状態を経る超短パルス光照射極短時間加熱を積極利用するための、多層構造薄膜媒体において留意すべき特性の明確化とその測定法の提案を行い、熱応答特性制御のための指針を示した。

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、GdFeCo 交換結合二層膜を対象に磁化ダイナミクスの測定を行った。結果、正味磁化が層間で反平行結合し単一のヒステリシスループとして応答する温度・組成条件において、各磁性層の磁化が打ち消し合い薄膜試料全体の磁化が消失する磁化補償温度より高温側に上述の単層フェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜と同様に角運動量補償温度が存在し、その近傍において実効 Gilbert ダンピング定数 $\alpha_{\text{eff}}$ 及び歳差運動周波数 $f$ が増大傾向を示すことが明らかとなった。しかしながら、 $\alpha_{\text{eff}}$ 及び $f$ の温度に対する変化幅は、単層のフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜と比較して小さい。また、反平行結合した Gd 層と FeCo 層からなる垂直磁化 Gd / FeCo 超格子薄膜試料においては、薄膜試料全体の磁化が消失する磁化補償温度が同様に存在するが、 $\alpha_{\text{eff}}$ 及び $f$ の増大がピークとなる温度と磁化補償温度の間には明確な差が現れないことが明らかとなった。これら結果より、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する GdFeCo 交換結合二層膜及び Gd / FeCo 超格子薄膜において、単層 GdFeCo 薄膜試料とは異なる磁化動特性が発現することを示した。

本研究におけるこれら検討について、以下にその内容をまとめる。

- (1) 副格子の磁化が反平行に結合したフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜において、正味の角運動量が消失する角運動量補償現象が生じ、その温度・組成近傍にてマクロスピンモデルで予測されていた実効 Gilbert ダンピング定数 $\alpha_{\text{eff}}$ 及び歳差運動周波数 $f$ の著しい増大が実際に生じることを、実験的に明らかとした。
- (2) 超短パルス光の照射後に生じる電子系－格子系の過渡的非平衡状態において、フェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜の減磁は主に電子温度の上昇と対応することを明らかとした。希土類 (Gd) 磁化の減磁は遷移金属 (FeCo) 磁化の応答

に対し僅かに遅れるものの、超短パルス光の照射から数 ps で各副格子の減磁が完了し、フェリ磁性体の熱磁気特性が利用可能となる。そして、約 6 ps 以降では、磁化の応答は外部印加磁界に対し明確な差が現れることから、遅くともこの時間スケール以降においては、強い非平衡状態を経て一般的に考えられている過熱状態へ以降でき、熱磁気特性を利用可能となることを明らかとした。

- (3) 室温より高い温度域に磁化補償温度  $T_{CM}$  の存在するフェリ磁性 GdFeCo 薄膜に対し、DC 外部磁界  $H_{ext}$  印加下で超短パルス光照射により媒体温度が  $T_{CM}$  を越えるように極短時間加熱を行うことで、正味磁化と  $H_{ext}$  の関係が高速に逆向きとなり、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た。ここで、媒体の温度が上述した角運動量補償温度の近傍となるように励起光の強度を調節することで、その温度域における高ダンピング特性を利用可能となり、磁化反転の高速化が可能であることを、励起光の強度に対する反転過程の依存性から示した。すなわち、超短パルス光照射による極短時間加熱により、フェリ磁性 GdFeCo 薄膜の磁化ダイナミクスを、数 ps の時間領域で高速に制御可能であることを示した。
- (4) 誘電体中間層により二磁性層間の磁気交換結合及び電気伝導を分断した GdFeCo 二層膜を用い、磁性金属多層膜内の極短時間加熱及びその後のエネルギー散逸過程を、磁化の応答から評価することを試みた。電子温度上昇と対応する超短パルス光照射後の各磁性金属層における減磁量は、電界強度分布の差に起因したエネルギー吸収量差、そして誘電体中間層による磁性金属層間での電子系の熱拡散抑制により、大きく異なることを明らかとした。そして、各磁性金属層内における電子・格子系の温度平衡化後も二磁性層は異

なる温度状態をとり、格子系を介した層間の温度平衡化には数 100 ps を要することが明らかとなった。また、磁性層間の磁気交換結合が分断された磁性多層膜では、その磁化ダイナミクスは層毎に独立したものとして扱えることを明らかとした。さらに、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磁性層間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示した。

(5) 正味磁化が層間で反平行結合し、単一のヒステリシスループとして磁化応答可能な GdFeCo 交換結合二層膜では、歳差運動を行う際にも層間の磁化が強く結合した状態を維持する。そして、単層のフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜と同様、試料全体の磁化が補償する温度より高い温度域において実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  が著しい増大傾向を示す。これより、各磁性層の角運動量同士が打ち消しあう角運動量補償現象が交換結合多層膜中においても生じることが明らかとなった。しかしながら、 $\alpha_{\text{eff}}$  及び  $f$  の変化範囲は単層のフェリ磁性 GdFeCo 薄膜と比較して小さいことが明らかとなった。このことは、磁氣的に交換結合した多層膜構造をとることにより、単層のフェリ磁性 GdFeCo 薄膜とは  $\alpha_{\text{eff}}$  と  $f$  の関係が異なる状態へ、薄膜試料全体の磁化ダイナミクスを積極的に制御できる可能性を示している。

(6) 磁化が反平行結合した Gd 層と FeCo 層からなる垂直磁化 Gd / FeCo 超格子薄膜試料において、薄膜試料全体で磁化補償現象が生じ、その温度  $T_{\text{CM}}$  の近傍にて  $\alpha_{\text{eff}}$  及び  $f$  が増大傾向を示すことが明らかとなった。すなわち、単層のフェリ磁性 GdFeCo 合金薄膜とは異なる磁化動特性の温度依存性を示すことが明らかとなった。

以上より、フェリ磁性 GdFeCo 多層薄膜において、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、そして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温度平衡化、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。

### 9.2. 本研究の展望

本研究では、フェリ磁性材料である GdFeCo の多層薄膜を対象に、高速磁化制御を応用上の目的とし、磁化ダイナミクスの温度及び組成に対する依存性、そして超短パルス光照射による極短時間加熱過程及びその後のエネルギー散逸の過程について検討を行った。

フェリ磁性 GdFeCo 薄膜では、その磁化ダイナミクスが温度及び組成に対し強い依存性を示し、その傾向は副格子磁化が強く反平行に結合しているとしたマクロスピンモデルにおいて概ね説明可能であることを、測定結果より実験的に明らかとした。また、層間の磁化が交換結合した多層膜構造においても、温度に対し単層のフェリ磁性薄膜と同様の傾向を示すことが明らかとなった。このことは、副格子を構成する磁化が反平行結合したその他種々のフェリ磁性材料、そして層間の磁化が反強磁性的に結合した多層膜においても、実効 Gilbert ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  及び歳差運動周波数  $f$  が温度及び組成に対して同様の变化傾向を示すことを示唆している。これは、磁気記録という観点では、従来型の外部磁界印加における磁化反転速度の高速化の物理的限界である強磁性共鳴限界を引き上げ、記録速度を飛躍的に高速化した次世代の超高速・大容量磁気記録デバイス実現に向けた突破口となる可能性を示すものである。また、超高密度磁気

記録実現のための手法として検討が行われているマイクロ波アシスト磁気記録方式においても、媒体材料の磁化動特性制御は重要な課題である。さらに、スピントロニクス分野においても、スピン注入磁化反転 (Spin Transfer Torque Magnetization Switching) 磁化反転を利用した磁気抵抗ランダムアクセスメモリ (MRAM: Magnetoresistive Random Access Memory) やスピントルク発振器 (STO: Spin Torque Oscillator) といったデバイスに用いることが検討されている、磁気トンネル接合 (MTJ: Magnetic Tunnel Junction) 素子等の磁化動特性制御にも応用可能であると考えられる。

そして本研究では、応用上の目的とした高速磁化制御を達成するための手法として、フェムト秒オーダーの超短パルス光照射による極短時間加熱を用いた熱アシスト磁気記録の提案を行っている。超短パルス光照射による極短時間加熱にて熱磁気特性を利用するためには、電子系と格子系のエネルギー状態の過渡的非平衡下での磁化の応答との対応を検討する必要があることを示した。また、誘電体層と金属層からなる典型的多層構造薄膜の超短パルス光照射による極短時間加熱過程ならびに各層内・層間のエネルギー散逸の過程を、金属磁性層の磁化の応答として層分離計測することで検討を行っている。このような検討は、超高密度磁気記録の実現を目的とし記録媒体の加熱により磁気ヘッドによる磁界印加で記録可能な領域まで保磁力及び垂直磁気異方性エネルギー $K_u$ を低減させる従来型の熱アシスト磁気記録においても重要である。プラズモンアンテナを用いた近接場光の生成による局所領域の熱アシスト磁気記録においても、媒体の面内方向への熱拡散による記録マークサイズの拡大を抑制するため、媒体加熱用光源を超短パルス化する試みが行われているが<sup>9-1)</sup>、超短パルス光を媒体加熱用の光源に用いる場合における媒体の熱応答特性の設計には上述の電子系－格子系の過渡的非平衡状態を考慮した極短時間加熱ならびにエネルギー

散逸過程の検討が必要となるためである。

また近年では、GdFeCo 薄膜等のフェリ磁性材料において、外部からの磁界印加なしに超短パルス光照射領域の初期磁化方向と逆向きに繰り返し反転を誘起可能である、超短熱パルス誘起磁化反転現象<sup>9-2)</sup>が報告されている。周囲磁化からの漏洩磁界による従来型の熱磁気記録では説明不可能である本現象は、フェリ磁性体中の各副格子のエネルギー非平衡状態形成<sup>9-3)</sup>が重要となる現象であると現在考えられている。この現象で誘起される反転磁区のサイズは照射した超短パルス励起光の空間エネルギー分布と強い相関を示し、反転可否を決定づけるエネルギー閾値が存在する現象と考えられるが、正味の磁化が減少し保磁力が増大する磁化補償温度・組成の近傍においても概ね同サイズの磁区が形成される<sup>9-4)</sup>。そして、高強度超短パルス励起光を円偏光とすることで、そのヘリシティにより形成磁区の磁化方向を一意に制御可能となる円偏光誘起磁化反転現象<sup>9-5)</sup>も報告されている。この現象は正味磁化ではなく副格子磁化の方向と対応した現象であり、円偏光磁気円二色性による左右円偏光でのエネルギー吸収差と前述の超短熱パルス誘起磁化反転現象の反転エネルギー閾値によって、円偏光のヘリシティに対応した最終磁化状態が形成されると考えられる<sup>9-6)</sup>。超短パルス光照射により生じる電子系－格子系の過渡的エネルギー非平衡下における各副格子の過渡的エネルギー非平衡に大きく依存するこれら新規磁化ダイナミクス現象の起源探求と積極的利用にも、本研究におけるエネルギー散逸という観点での検討が有用であると考えられる。

このように、本研究における検討結果、そして提案を行った測定手法は、磁気記録及びスピントロニクス分野において検討されている各種デバイスの研究・開発、そして新規物理現象の起源探求と積極的利用という観点で、貢献できるものと考えられる。

## 参考文献

- 9-1) K. Nakagawa, A. Tajiri, K. Tamura, S. Toriumi, Y. Ashizawa, A. Tsukamoto, A. Itoh, Y. Sasaki, S. Saito, M. Takahashi, and S. Ohnuki: *J. Magn. Soc. Jpn.* **37**, 119 (2013).
- 9-2) T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, S. El Moussaoui, L. Le Guyader, E. Mengotti, L. J. Heyderman, F. Nolting, A. Tsukamoto, A. Itoh, D. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. M. Kalashnikova, K. Vahaplar, J. Mentink, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A. V. Kimel: *Nature Comm.* **3**, 666 (2012).
- 9-3) I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A. V. Kimel: *Nature* **472**, 205 (2011).
- 9-4) H. Yoshikawa, S. Kogure, T. Sato, A. Tsukamoto, and A. Itoh: *J. Magn. Soc. Jpn.* **38**, 139 (2014).
- 9-5) C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.* **99**, 047601 (2007).
- 9-6) A. Tsukamoto, S. Kogure, H. Yoshikawa, T. Sato, and A. Itoh: *Ultrafast Magnetism I - Proc. Int. Conf. UMC 2013, Springer Proceedings in Physics* **159**, 334 (2014).



謝辞

## 謝辞

はじめに、本研究を遂行するにあたり、研究に対する貴重なご助言とご協力をしていただいた、日本大学理工学部 伊藤彰義名誉教授，中川活二教授，芦澤好人助教，昼夜を問わず議論や実験を行い，苦労をともにした塚本新准教授，日本大学大学院理工学研究科 博士前期課程電子工学専攻 修了生の梶山洗一氏，川村晋一氏，清水崇博氏，鳥海紳悟氏，清水隆太郎氏，小暮真也氏，日本大学理工学部 電子情報工学科 卒業生の鈴木祐亮氏，日本大学大学院理工学研究科 博士前期課程電子工学専攻の吉川大貴氏，山川慶二氏，日本大学大学理工学部 電子情報工学科の寺下進之佑氏，植田涼平氏，Nicolas Valencia 氏，日本大学理工学部ポスト・ドクトラル・フェローの Souliman El Moussaoui 博士に対し，御礼申し上げます。また，塚本新 准教授と共に研究室にて磁化ダイナミクスの研究グループを立ち上げられ先行して研究を行い，ご助言をいただきました本学博士前期課程電子工学専攻修了生の西村純平氏に，心より感謝いたします。

日本大学理工学部 山本寛教授には，本論文の副査として多くの貴重なご教示，ご助言を頂きましたことを，心より感謝いたします。

2012 年秋より 3 ヶ月間にわたり日本大学理工学部 伊藤・塚本研究室 (当時) に滞在し，議論や実験を共に行った蔡永福氏 (長岡技術科学大学大学院 材料開発工学専攻 結晶材料工学研究室 博士課程)，そしてこのような機会を作って頂いた石橋隆幸先生 (長岡技術科学大学 工学部 物質・材料系 准教授) に，心より感謝いたします。

2010 年にオランダ Radboud University へ招聘して頂いた Theo Rasing 教授，訪問時に施設を案内していただき，実験にご協力頂いた Andrei Kirilyuk 教授，Kadir Vahaplar 博士をはじめ Spectroscopy of Solids and Interfaces のスタッフの方々，ドイツ Helmholtz-Zentrum Berlin BESSY II 訪問時に施設案内及び議論をさせていた

## 謝辞

いただいた Ilie Radu 博士, 2011 年の MORIS (Magnetics and Optics Research International Symposium) 2011 参加・発表時に貴重な議論をさせていただいた Sam Khorsand 博士, 2009 年と 2011 年の本学来訪時, 本研究に対する貴重なご助言をいただきました Alexey Kimel 博士に対し, 心より感謝いたします。

本研究遂行にあたり, オランダ Radboud University, アメリカ Stanford University, ドイツ Helmholtz-Zentrum Berlin BESSY II, スイス Paul Scherrer Institut Swiss Light Source との国際共同研究に関わることができ, 様々な事を経験し学ぶ, 良い機会となりました。

最後に, 研究生活におけるご協力にとどまらず, 日頃から支えていただいた, 日本大学理工学部 理工学研究所 先端材料科学センター 事務の山崎正子氏, 梶田恵氏, 塚本研究室 事務の谷口貴子氏, 伊藤・塚本研究室 (現 塚本研究室), 中川・芦澤研究室の修了・卒業生及び所属学生, そして父母に対し感謝の意をこめ, 謝辞とさせていただきます。

本研究の一部は, 以下の助成のもと行われました。ここに御礼申し上げます。

- ・ 独立行政法人 科学技術振興機構 (JST) 戦略的想像研究推進事業「さきがけ」研究「革新的次世代デバイスを目指す材料とプロセス」
- ・ 日本大学学術研究戦略プロジェクト (N.研究プロジェクト)「ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求」
- ・ 平成 25～29 年度 文部科学省 私立大学戦略的研究基盤支援事業 (S1311020)「超短時間光・物質相互作用の理解・制御が切り開く新材料・物性・デバイスの創生と探索」

## 付録

### 論文・口頭発表等一覧

#### —本研究と関連する論文 (査読あり)— (3件)

- 1) T. Sato, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Layer-Specific Measurement of Ultrafast Spin Dynamics in GdFeCo Double Layer with Dielectric Interlayer” , *J. Magn. Soc. Jpn.* **38**, 115-118 (2014).
- 2) T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Film structure dependence of demagnetization time scale of RE-TM GdFeCo alloy thin films” , *J. Magn. Soc. Jpn.* **36**, 82-85 (2012).
- 3) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh: “Precessional switching by ultrashort pulse laser: Beyond room temperature ferromagnetic resonance limit” , *J. Appl. Phys.* **109**, 07D302, 1-3 (2011).  
(Appears also in “*Virtual Journal of Ultrafast Science*” **10** (4), 1-3 (2011).)

#### —その他の論文 (査読あり)— (2件)

- 1) A. Tsukamoto, S. Kogure, H. Yoshikawa, T. Sato, and A. Itoh: “Contribution of Magnetic Circular Dichroism in All-Optical Light Helicity-Dependent Magnetic Switching” , *Ultrafast Magnetism I - Proc. Int. Conf. UMC 2013, Springer Proceedings in Physics*, **159**, 334-336 (2014).
- 2) H. Yoshikawa, S. Kogure, S. Toriumi, T. Sato, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Ultrafast heat pulse magnetization switching near compensation condition in GdFeCo” , *J. Magn. Soc. Jpn.* **38**, 139-142 (2014).

— 口頭発表 (国際会議) — (21 件)

- 1) A. Tsukamoto, H. Yoshikawa, T. Sato, and A. Itoh: “All-Optical manipulation of sub-lattice magnetic system by femtosecond pulsed laser” , 59th Annual Magnetism & Magnetic Materials Conference (MMM), Honolulu, Hawaii, AD-05, 2014 年 11 月 4 日.
- 2) H. Yoshikawa, T. Sato, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Structural Dependent Efficiency of All-Optical Magnetization Switching on Multi-Layered Films” , 59th Annual Magnetism & Magnetic Materials Conference (MMM), Honolulu, Hawaii, AD-07, 2014 年 11 月 4 日.
- 3) T. Sato, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “ LAYER-SPECIFIC MEASUREMENT OF ULTRAFAST SPIN DYNAMICS IN GdFeCo DOUBLE LAYER WITH DIELECTRIC INTERLAYER” , Magnetism and Optics Research International Symposium (MORIS) 2013, Omiya, Japan, We-03-02, 2013 年 12 月 4 日.
- 4) H. Yoshikawa, S. Kogure, T. Sato, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “ULTRAFAST HEAT PULSE MAGNETIZATION SWITCHING NEAR COMPENSATION COMPOSITION IN GdFeCo” , Magnetism and Optics Research International Symposium (MORIS) 2013, Omiya, Japan, We-P-19, 2013 年 12 月 4 日.
- 5) A. Tsukamoto, S. Kogure, H. Yoshikawa, T. Sato, and A. Itoh: “Contribution of magnetic circular dichroism in all-optical light helicity-dependent magnetic switching” (invited), Ultrafast Magnetism Conference (UMC) 2013, Strasbourg, France, 47, 2013 年 11 月 1 日.
- 6) A. Tsukamoto, S. Kogure, H. Yoshikawa, T. Sato, and A. Itoh: “CONTRIBUTION OF MAGNETIC CIRCULAR DICHOISM IN HELICITY-DEPENDENT ALL-OPTICAL MAGNETIZATION SWITCHING” , Joint European Magnetic Symposia (JEMS) 2013, Rhodes, Greece, 358, 2013 年 8 月 29 日.
- 7) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “Ultrafast spin manipulation in ferrimagnetic GdFeCo by femtosecond pulsed laser” (invited), International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS) 2012, Nara, Japan, 4aE-5, 2012 年 10 月 4 日.

- 8) T. Sato, R. Shimizu, S. Toriumi, S. Kogure, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Laser-induced ultrafast demagnetization in layered GdFeCo films” , International Conference of the Asian Union of Magnetics Societies (ICAUMS) 2012, Nara, Japan, 2pA-5, 2012 年 10 月 2 日.
- 9) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “Neighboring layer dependence of ultrafast thermo-magnetic property in GdFeCo films” , International Conference on Magnetism (ICM) 2012, Busan, Korea, RK08, 2012 年 7 月 12 日.
- 10) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “Ultrafast spin manipulation of GdFeCo by thermo-magnetic stimulus with femtosecond pulsed laser” (invited), Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2012, Seoul, Korea, p. 8, 2012 年 6 月 25 日.
- 11) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “Structural dependence of ultrafast thermal/magnetic response in layered GdFeCo films” , IEEE International Magnetic Conference (INTERMAG) 2012, Vancouver, Canada, BR-15, 2012 年 5 月 8 日.
- 12) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “LASER-INDUCED SPIN DYNAMICS” (invited), Moscow International Symposium on Magnetism 2011 (MISM 2011), Moscow, Russia, 23PR-F-5, 2011 年 8 月 23 日.
- 13) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “Laser-induced spin dynamics of RE-TM GdFeCo” (invited), 5th International Workshop on Spin Currents, Sendai, Japan, CP-3, 2011 年 7 月 27 日.
- 14) A. Tsukamoto, T. Sato, T. Shimizu, S. Toriumi, R. Shimizu, and A. Itoh: “Laser induced precessional switching in ferrimagnetic GdFeCo” (invited), Magnetics and Optics Research International Symposium 2011 (MORIS 2011), Nijmegen, The Netherlands, p. 20, 2011 年 6 月 22 日.
- 15) T. Sato, S. Toriumi, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Film Structure dependence of demagnetization time scale in GdFeCo” , Magnetics and Optics Research International Symposium 2011 (MORIS 2011), Nijmegen, The Netherlands, P25, 2011 年 6 月 22 日.

- 16) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh: “Precessional switching by ultrafast pulse laser: beyond room temperature FMR limit” , 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, Atlanta, Georgia, USA, BC-03, 2010 年 11 月 15 日.
- 17) T. Sato, S. Toriumi, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Composition control for reducing magnetization reversal time in ferrimagnetic GdFeCo” , International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications 2010 (ISAMMA 2010), Sendai, Japan, SD-08, 2010 年 7 月 16 日.
- 18) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh: “Laser-induced demagnetization of RE-TM GdFeCo” (invited), International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications 2010 (ISAMMA 2010), Sendai, Japan, AY-01, 2010 年 7 月 13 日.
- 19) A. Tsukamoto, T. Sato, T. Shimizu, S. Toriumi, and A. Itoh: “Magnetic damping property near ferrimagnetic compensation points in GdFeCo” , 11th Joint MMM-Intermag Conference 2010, Washington DC, USA, 2010 年 1 月 21 日.
- 20) A. Tsukamoto, K. Kajiyama, S. Kawamura, T. Sato, and A. Itoh: “Ultrafast magnetization dynamics near ferrimagnetic compensation points in GdFeCo” , International Conference on Magnetism 2009 (ICM '09), Karlsruhe, Germany, Tu-C-4.1-14, 2009 年 7 月 28 日.
- 21) A. Tsukamoto, K. Kajiyama, S. Kawamura, T. Sato, T. Shimizu, and A. Itoh: “ MEASUREMENTS OF MAGNETIC DAMPING PROPERTY IN FERRIMAGNETIC GdFeCo ALLOY ” , Magnetism and Optics Research International Symposium for New Storage Technology (MORIS 2009), Awaji, Japan, TuP-03-08, 2009 年 6 月 16 日.

一口頭発表 (国内会議) (11 件)

- 1) 佐藤哲也, 塚本新, 若林敬造, 渡邊昭廣, 木村寿利: “磁気記録速度高速化を目的とした磁性材料の動的特性と各種磁気物性変量の相関に関する検討”, 第 18 回 日本情報ディレクトリ学会全国大会, 三島, 2014 年 9 月 7 日.
- 2) 佐藤哲也, 吉川大貴, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo 二層膜における超短パルス光照射極短時間加熱・熱拡散過程の誘電体中間層厚依存性”, 第 38 回 日本磁気学会学術講演会, 日吉, 3aA-7, 2014 年 9 月 3 日.
- 3) 吉川大貴, 佐藤哲也, 塚本新, 伊藤彰義: “全光型磁化反転応答特性の試料多層構造依存性”, 第 38 回 日本磁気学会学術講演会, 日吉, 3aA-8, 2014 年 9 月 3 日.
- 4) 佐藤哲也, 塚本新: “誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の超高速減磁過程”, 第 74 回 応用物理学会秋季学術講演会, 京都, 19a-C15-4, 2013 年 9 月 19 日.
- 5) 佐藤哲也, 清水隆太郎, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo 交換結合二層膜における歳差運動挙動の磁化状態依存性”, 第 37 回 日本磁気学会学術講演会, 札幌, 5pC-12, 2013 年 9 月 5 日.
- 6) 吉川大貴, 小暮真也, 佐藤哲也, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo フェリ磁性体補償組成近傍における超短熱パルス誘起全光型磁化反転”, 第 37 回 日本磁気学会学術講演会, 札幌, 5pA-1, 2013 年 9 月 5 日.
- 7) 佐藤哲也, 清水隆太郎, 鳥海紳悟, 小暮真也, 塚本新, 伊藤彰義: “超短パルス光照射による GdFeCo 薄膜のサブ ps 領域減磁過程の観察”, 平成 24 年度 電気学会 基礎・材料・共通部門大会, 秋田, B-2, 2012 年 9 月 21 日.
- 8) 佐藤哲也, 清水隆太郎, 鳥海紳悟, 塚本新, 伊藤彰義: “超短パルス光照射による GdFeCo 減磁過程の媒体層構成依存性”, 第 35 回 日本磁気学会学術講演会, 新潟, 28pA-3, 2011 年 9 月 28 日.
- 9) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh: “Magnetization Dynamics induced by Femtosecond Laser Pulses in Ferrimagnetic GdFeCo” (invited), 第 34 回 日本磁気学会学術講演会, つくば, 4pA-3, 2010 年 9 月 4 日.
- 10) 塚本新, 佐藤哲也, 清水崇博, 鳥海紳悟, 伊藤彰義: “フェリ磁性 GdFeCo 合金の磁化ダンピング特性” (invited), 日本磁気学会 第 170 回研究会 “光と磁気のシナジー技術”, 東京, pp. 1-6, 2010 年 1 月 29 日.

- 11) 佐藤哲也, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo フェリ磁性体薄膜における磁化動特性の組成比依存性”, 第 33 回 日本磁気学会学術講演会, 長崎, 13aB-7, 2009 年 9 月 13 日.

一口頭発表 (学内) — (15 件)

- 1) 山川慶二, 吉川大貴, 佐藤哲也, 塚本新: “TbFeCo 薄膜における磁気光学カー効果の波長依存性”, 第 58 回 日本大学理工学部学術講演会, C-12, 2014 年 12 月 6 日.
- 2) 寺下進之佑, 吉川大貴, 佐藤哲也, 塚本新: “GdFeCo フェリ磁性合金薄膜における磁気円二色性の組成依存性の計測”, 第 58 回 日本大学理工学部学術講演会, C-13, 2014 年 12 月 6 日.
- 3) 植田涼平, 佐藤哲也, 吉川大貴, 塚本新: “GdFeCo 薄膜における垂直磁気異方性の膜厚依存性”, 第 58 回 日本大学理工学部学術講演会, C-14, 2014 年 12 月 6 日.
- 4) 佐藤哲也: “誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の超短パルス誘起スピンドイナミクス”, 第 23 回 材料科学に関する若手フォーラム (日本大学理工学部理工学研究所先端材料科学センター, N.プロジェクト「ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求」, 基盤形成プロジェクト「超短時間光・物質相互作用の理解・制御が切り開く新材料・物性・デバイスの探索と創生」共催 合同若手フォーラム), pp. 42-43, 2014 年 2 月 15 日.
- 5) T. Sato, R. Shimizu, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “Measurement of Magnetization Dynamics of Anti-parallelly Coupled GdFeCo Double Layer Films”, 第 57 回 日本大学理工学部学術講演会, C-17, 2013 年 12 月 7 日.
- 6) H. Yoshikawa, T. Sato, S. Kogure, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “ULTRAFAST HEAT PULSE MAGNETIZATION SWITCHING NEAR COMPENSATION CONDITION IN GdFeCo”, 第 57 回 日本大学理工学部学術講演会, C-20, 2013 年 12 月 7 日.
- 7) 小暮真也, 佐藤哲也, 清水隆太郎, 吉川大貴, 塚本新, 伊藤彰義: “フェリ磁性 GdFeCo における超短パルス円偏光誘起磁化反転現象への磁気円二色性の寄与”, 第 56 回 日本大学理工学部学術講演会, C-1, 2012 年 11 月 28 日.



- 8) 吉川大貴, 佐藤哲也, 小暮真也, 清水隆太郎, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo における超短熱パルス磁化反転条件の組成依存性の観測”, 第 56 回 日本大学理工学部学術講演会, C-2, 2012 年 11 月 28 日.
- 9) 佐藤哲也, 清水隆太郎, 鳥海紳悟, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo 合金薄膜における超短パルスレーザー励起減磁過程の媒体層構成依存性”, 第 55 回 日本大学理工学部学術講演会, M-23, 2011 年 11 月 26 日.
- 10) 小暮真也, 鳥海紳悟, 佐藤哲也, 塚本新, 伊藤彰義: “円偏光誘起磁化反転現象における形成磁区の励起光強度依存性”, 第 55 回 日本大学理工学部学術講演会, M-24, 2011 年 11 月 26 日.
- 11) 鳥海紳悟, 佐藤哲也, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo 磁性薄膜における超短パルスレーザー光誘起磁化反転”, 第 54 回 日本大学理工学部学術講演会, C-8, 2010 年 11 月 27 日.
- 12) 清水崇博, 佐藤哲也, 鳥海紳悟, 清水隆太郎, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo フェリ磁性体の角運動量補償点利用超高速磁化歳差スイッチング”, 第 54 回 日本磁気学会学術講演会, C-9, 2010 年 11 月 27 日.
- 13) 佐藤哲也, 清水崇博, 鳥海紳悟, 塚本新, 伊藤彰義: “フェリ磁性 GdFeCo における磁化反転時間の組成による制御”, The Second Symposium on Nanotechnology Excellence, Nihon University 2010, P24, 2010 年 9 月 18 日.
- 14) 佐藤哲也: “フェリ磁性体副格子磁化の動特性解明に向けた全光・波長依存型動特性測定装置”, 先端材料科学センター & N.プロジェクト「ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求」合同若手フォーラム, pp. 40-41, 2010 年 2 月 13 日.
- 15) 佐藤哲也: “GdFeCo フェリ磁性体薄膜の高速磁化応答計測”, 日本大学理工学部理工学研究所先端材料科学センター主催 第 18 回材料科学に関する若手フォーラム, pp. 26-27, 2009 年 2 月 14 日.

—受賞— (4件)

- 1) 佐藤哲也, 吉川大貴, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo 二層膜における超短パルス光照射極短時間加熱・熱拡散過程の誘電体中間層厚依存性”, 学生講演賞 (桜井講演賞) 受賞決定, 第 38 回 日本磁気学会学術講演会, 日吉, 3aA-7, 2015 年 9 月 9 日 第 39 回 日本磁気学会学術講演会 (名古屋大学) にて表彰式予定.
- 2) 佐藤哲也: “誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜の超短パルス誘起スピンドイナミクス”, 第 23 回 材料科学に関する若手フォーラム (日本大学理工学部理工学研究所先端材料科学センター, N.プロジェクト「ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求」, 基盤形成プロジェクト「超短時間光・物質相互作用の理解・制御が切り開く新材料・物性・デバイスの探索と創生」共催 合同若手フォーラム) 優秀発表賞受賞, pp. 42-43, 2014 年 2 月 15 日.
- 3) 佐藤哲也: “フェリ磁性体副格子磁化の動特性解明に向けた全光・波長依存型動特性測定装置”, 先端材料科学センター & N.プロジェクト「ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求」合同若手フォーラム 優秀発表賞受賞, 2010 年 2 月 13 日.
- 4) 佐藤哲也: “GdFeCo フェリ磁性体薄膜の高速磁化応答計測”, 日本大学理工学部理工学研究所先端材料科学センター主催 第 18 回材料科学に関する若手フォーラム 優秀発表賞受賞, 2009 年 2 月 14 日.

—共同研究者として共同受賞— (3件)

- 1) H. Yoshikawa, S. Kogure, T. Sato, A. Tsukamoto, and A. Itoh: “ULTRAFAST HEAT PULSE MAGNETIZATION SWITCHING NEAR COMPENSATION COMPOSITION IN GdFeCo”, Best Poster Award, Magnetism and Optics Research International Symposium (MORIS) 2013, Omiya, Japan, We-P-19, 2013 年 12 月 6 日.
- 2) 吉川大貴, 佐藤哲也, 小暮真也, 清水隆太郎, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo における超短熱パルス磁化反転条件の組成依存性の観測”, 第 56 回 日本大学理工学部学術講演会 優秀発表賞受賞, C-2, 2012 年 11 月 28 日.
- 3) 鳥海紳悟, 佐藤哲也, 塚本新, 伊藤彰義: “GdFeCo 磁性薄膜における超短パルスレーザ光誘起磁化反転”, 第 54 回 日本大学理工学部学術講演会 優秀発表賞受賞, 2010 年 11 月 27 日.