

超短時間積層薄膜内エネルギー散逸過程に着目した
全光型磁化反転現象に関する研究

平成 30 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

吉 川 大 貴

目次

第 1 章 超高速デバイスと超短時間物性

- 1-1 研究の背景：大規模情報処理社会における超高速情報蓄積
- 1-2 研究の対象：超短時間磁気物性
- 1-3 研究の目的：全光型磁化反転現象の解明とその試料作製指針の検討
- 1-4 本論文の構成
- 1-5 参考文献

第 2 章 フェリ磁性薄膜試料の作製と計測方法

- 2-1 GdFeCo 希土類-遷移金属系アモルファス合金フェリ磁性薄膜
- 2-2 マグネトロンスパッタ法による多層薄膜試料作製
- 2-3 量子干渉素子による正味の磁化量と磁化特性の評価
- 2-4 磁気光学効果による副格子磁化特性評価
- 2-5 All-Optical Pump Probe 法による時分解磁気光学応答計測
- 2-6 磁気光学観察撮像と磁区パターン形状特徴の評価法
- 2-7 本章のまとめ
- 2-8 参考文献

第 3 章 フェリ磁性体の磁化補償点近傍における全光型磁化反転

- 3-1 フェリ磁性体の磁副格子磁化構造と磁化反転現象
- 3-2 作製試料群：組成の異なる Gd-FeCo 試料群
- 3-3 磁化補償点近傍における静的磁気特性の評価
- 3-4 磁化補償組成近傍における全光型磁化反転

3-5 磁化補償温度近傍における全光型磁化反転

3-6 本章のまとめ

3-7 参考文献

第4章 非断熱的エネルギー散逸過程に着目した全光型磁化反転

4-1 超短パルス光照射後の積層薄膜における電子・格子系の過渡応答

4-2 作製試料群：積層構造膜厚の異なる GdFeCo/SiN/AlTi 試料群

4-3 膜厚の異なる GdFeCo/SiN/AlTi 積層試料群における全光型磁化反転

4-4 磁性層膜厚の異なる GdFeCo 単層試料群における全光型磁化反転

4-5 本章のまとめ

4-6 参考文献

第5章 電子比熱に着目した超短時間エネルギー散逸と全光型磁化反転

5-1 超短時間エネルギー散逸過程と局所熱力学的平衡

5-2 作製試料群：下地金属種の異なる GdFeCo/Metal 試料群

5-3 GdFeCo/Metal 試料群における超短時間局所平衡系エネルギー分配と比熱

5-4 下地金属種の異なる GdFeCo/Metal 試料群における全光型磁化反転

5-6 本章のまとめ

5-7 参考文献

第6章 結論

謝辞

関連発表一覧

第 1 章 超高速デバイスと超短時間物性

1-1 研究の背景：大規模情報処理社会における超高速情報蓄積

現在、歴史上類を見ないほど取り扱う情報量が爆発的に増加を続け、さらなる高速な演算・記録を実現する電子デバイスの開発とその礎となる新規物性の探索が必要となっている。記録密度(記録容量 / 素子体積)と記録速度は相補的に演算・記録の両輪を為しており、常にそれぞれの能力の向上が求められる。世界最大のコンピュータネットワーク機器開発企業 Cisco Systems, Inc.の解析報告書 Cisco Global Cloud Index^[1]によれば、世界で生成されるデータは 2015 年で年間 145 ZB (Zeta Byte, 10^{21} Byte), 2020 年には 600 ZB と予測される。この内、記録ストレージデータ量は 2015 年から 2020 年にかけて、1.4 ZB から 6.2 ZB に増加する見込みである。この爆発的な増加は、大規模なデータベース(Big Data) / 解析 / Internet of Everything (IoE), Internet of Things (IoT) の急速な発展に伴う要請である。たとえば IoT 素子は今後 154 億個から 2020 年までに 304 億個までに増加すると予測される^[2]。また、ビッグデータは、世界のストレージ容量のおよそ 16 ~ 18 %を占めるデータセンターの保存データのうち、ビッグデータ単独で占める割合は 2015 年の 15 %から 2020 年には 27 %に上昇する見込みである。データセンターのみならず、高速計算機施設や大型実験施設においても強い要請がある。たとえば大型ハドロン衝突型加速器(Large Hadron Collider: LHC)では毎秒 100 GB (Giga Byte, 10^9 Byte)のデータを生成し、圧縮・記録・解析を行う^[3]。これらのデータの解析・保存は、Hard Disk Drive (HDD) や磁気テープに代表されるような磁性薄膜や Solid State Drive (SSD) に代表さ

1-2 研究の領域 : Ultradast Magnetism と超短時間物性

れるような半導体微細構造により保存されている。これらの媒体・構造は数 100 ~ 数 nm で実現された Nano technology と呼ばれる技術群（薄膜作製、微細加工、結晶成長など）により生み出された。このような空間における局所性の追求と同様に、高速化を目指すためには時間においてもその局所性を検討する必要がある。今日のエレクトロニクス・磁気工学の基本原理となる電荷を担う電子のふるまい、また主として電子スピンの起源となる磁化応答に対し、物理的限界近くまで技術的追求が進み、前者においては半導体デバイスである Central Processing Unit (CPU) がその動作限界に近い GHz (Giga Hertz : 10^9 Hz) オーダー、すなわち ns (nano second : 10^{-9} s) オーダーでデジタルコンテンツを生成する。磁化応答も同様で、Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式から導かれる強磁性共鳴限界で示されるような磁化の動的応答限界は、GHz オーダー（時間にすると ns 程度）にとどまる。すなわち、先に述べたような多量の情報を演算・記録するような応答デバイスへの要請に答えるためには、それら物理的限界を超えた fs (femto second : 10^{-15} s) ~ ps (pico second : 10^{-12} s) の時間領域で応答可能な新しい物理原理に根ざした現象を探究・発見・応用する必要がある。

1-2 研究の対象 : 超短時間磁気物性

複数の離散状態により表されるデジタルコンテンツの記録・入出力には常に実存する物質を介して行われる。現在、主としてデジタル情報は 2 つの物理状態すなわち bit により処理・記録が行われ、磁気記録においては磁化の向きを用いて記録が行われる。物質を用いて常温付近で動作するデバイスを作る以上、構成材料の各種物性に従わざるを得ない。ps の領域では非平衡な温度現象と密接に絡んでおり、諸素励起・伝搬の時定数が律則する。ps における領域では fs, as (atto second : 10^{-18} s) の素粒子物理や分子の電子振動などの、加速器に代表され

る極限環境下で顕わになるような電子による根源的素過程に迫る時間領域であり、電子的にも磁氣的にも様々な物理や現象が重畳して起こる^{[4][5][6]}。

室温環境下における超短時間の光励起は主として数 sub-ps 程度未満のパルス幅を持つパルス光により行われる。固体内で光と直接相互作用するものは電子である。数~数 10 fs の領域ではフェムト秒化学^[7] に代表されるような分子などの極めて局在した系において、光により励起された電子の応答や反応が確認されている。たとえば、分子における電子振動^[8]が観察されており、交換相互作用にもとづく振動現象の観測も行われている^[9]。また、金属表面においても摂動的な電子系の光吸収により電子系が格子系と乖離したエネルギー状態を発現することになる。

電子系と格子系が乖離した金属内のエネルギー状態は電子温度・格子温度としてやがて平衡化し、その準平衡温度からともに室温へと平衡化していく。このような準平衡温度からの平衡化過程である数 10 ps~数 ns (1000 ps) では Spin wave^{[10][11]}や磁化歳差運動^{[12][13]}、Strain wave^[14]が計測されている。また前述の通り、ns という時間スケールは電子デバイスや磁気デバイスの現行の物理的限界である。従って既存の光磁気記録においては単一の磁性金属層内において一つの温度にもとづく熱拡散方程式にもとづいて記録技術が確立されてきた^{[15][16]}。

これらの時間領域の間に位置する sub-ps (100 fs) ~ 数 10 ps 程度の時間領域では sub-ps 未満のパルス幅を持つパルス光吸収により形成されていく乖離した電子系と格子系のエネルギー状態が二つの温度として非断熱的に平衡化していく非平衡な超短時間エネルギー平衡化過程^{[17][18][19][20]}と、それに追従して超短時間減磁現象^{[21][22]}や、超短時間スピン散逸^{[23][24]}、THz 発振^[25]、などが計測・確認されている。この時間領域ではこのように数多くの超短時間磁気現象が報告されているものの、大系的な理解には未だ至っていない。これは、励起・観察に

ともに主として超短パルス光を用いていること、そして複数の非平衡・非断熱的な現象が重畳して誘起されるためである。特に磁性合金においては、電子・格子・スピン・軌道の複数の系、そしてそれらの系間の相互作用を内包しており、また光誘起により誘起される確率的な熱磁気現象も存在し、本時間領域で応答する現象・物理を単一に誘起すること、そして計算や直接計測により、とりまとめ・仕分けし・応用することは大変困難である。

ただし、このような磁性合金内において超短パルス光照射によって誘起される現象でありながら非常に安定して誘起されるものもある。その一つが全光型磁化反転 (All-Optical magnetization Switching: AOS) ^[26] である。AOS は sub-ps ~ ps 程度の超短パルスレーザーの単パルス照射のみにより外部磁場を要せずに誘起される完全磁化反転現象である。図 1-1 に単パルス照射毎の AOS による形成磁区観察を示す。(a) 表面に一様に磁化した GdFeCo 薄膜において、超短パルス光を単パルス照射すると照射位置で (b) 初期磁化に対して反対の裏面に磁化した磁区を形成する。またやや右にずらして単パルス照射すると、照射範囲において初期磁区に対し(c) の様に反転した磁区を形成する。このように再現性のきわめて良い AOS 現象の理解は、すなわちより超短時間の高速な磁気記録，電子・磁気物性への理解・応用に強くつながると考えられる。そこで、本研究では AOS 現象を具体的な研究対象とする。

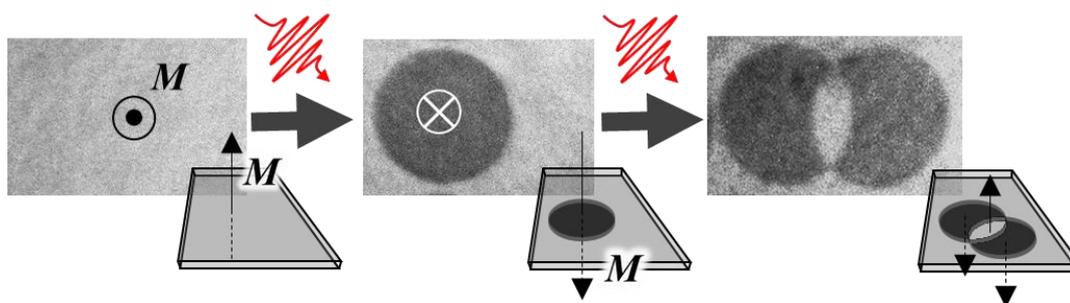


図 1-1 単パルス照射ごとに AOS により形成される磁区パターンの例

1-3 研究の目的：全光型磁化反転の解明とその試料作製指針の検討

10年前、2007年にAOS現象はStanciu, RasingらとTsukamotoらによりフェリ磁性薄膜GdFeCoで発見された^[26]。AOSは外部磁場を印加することなく、超短パルス光の入射のみで磁化反転を誘起できる。これまでにAOSは偏光に一意に依存し磁区を形成可能な偏光依存型(Helicity Dependent – All-Optical magnetization Switching: HD-AOS)と、偏光によらず初期磁区状態に対し単一パルス光照射で完全に反転磁化状態を誘起可能な偏光無依存型(Helicity Independent – All-Optical magnetization Switching: HI-AOS)の二つが報告されている。この二つのAOSは個別の現象ではなく、HD-AOSはHI-AOS現象に材料のMCD (Magnetic Circular Dichroism) によって生じる左右円偏光に対する吸収率差により発現するものとして理解されている^[27]。そこで本研究では、特にHI-AOSの磁化反転原理解明を目的として行う。

AOSはその発見以降、超短パルス光によって誘起される現象であること、磁場印加を必要としないことなど、その従来にない特異な性質を示すことから磁化反転原理解明に向けて多くの研究がなされてきた。可視光やX線源、THz光を用いた元素別時分解磁気光学計測^[23]^[28]、磁気イメージング^[29]や計算機検討^[30]^[32]などにより、AOSは磁場中の磁化に働くトルクで説明されるような従来の磁場駆動型の磁化反転過程のみでは説明することは困難で^[27]^[31]、局所的なスピンのモデル^[31]にもとづいて既知の物理とは大きく異なる磁化反転原理を有していると示唆されている。また本モデルでは、①反平行に結合した副格子磁化構造、②各副格子磁化の非平衡な熱特性、③垂直磁気異方性(特にHD-AOSの場合)が重要であると考えられている^[33]。

ただし、AOSにおいてその反転過程に磁場が主因として介在せず、正味の磁化に依存しない、真に新奇な反転原理であるかは不明であった。また、本モデル

1-3 研究の目的：全光型磁化反転の解明とその試料作製指針の検討

で重要となる超短時間の光吸収・エネルギー散逸過程は金属薄膜において、光の吸収強度分布、(1-2)節に記した非平衡・非断熱な散逸過程が薄膜内で非局所に顕在化する。しかし、これまでの検討ではそれぞれ異なる試料構造で検討が進められてきており、超短パルス光照射後の数 10 ps では、元素・膜厚・膜構造に過敏にその磁化特性を変えうる複雑なフェリ磁性金属内のエネルギー散逸過程を生じ、より具体的な定量的原理追求を阻む要因となっていた。

これに対し、本研究では“系統的な試料群”を用いることで、系統的に複雑なフェリ磁性金属内のエネルギー散逸過程を変え、この試料群の AOS の特性からそれぞれの相関につき検討を行う。AOS 発見以来重要な根拠を提示し続ける希土類遷移金属アモルファス合金フェリ磁性薄膜 GdFeCo または隣接薄膜の組成や膜厚を系統的に変えた積層構造を持つ試料群を作製した。この試料群に対し可視光域での超短時間時分解磁気・光学応答計測、磁気イメージングを主軸とし AOS 現象に関するより具体的なエネルギー散逸過程と反転過程について検討する。さらに、本研究では超短時間光・磁性作用である AOS 現象の高効率化、すなわち、より低い光照射エネルギーでの AOS 現象誘起を図り、上記散逸過程に留意した試料作製の指針の提示を試みる。

1-4 本論文の構成

超短パルス光を用いて誘起される超短時間のエネルギー散逸過程に着目し、全光型磁化反転(AOS)の反転原理を検討し、その試料作製指針の提示を目的とする本論文は、以下に示す 6 章から構成されている。

第 1 章は、本研究の背景やその対象と目的について述べた。

第 2 章は、本研究に際して用いた実験系のうち、主たる試料作製・計測方法・

評価方法の意図と手法について述べる。

第 3 章は、対象とするフェリ磁性体 GdFeCo の持つ特異な状態である磁化補償近傍において AOS を評価し、AOS が従来型の磁化反転と大きく異なる現象であることを示すとともに、高い情報保持安定性を実現可能な AOS 試料の作製について提案する。

第 4 章は、超短パルス光吸収後の非断熱的エネルギー散逸過程に着目し、AOS における各層の積層膜厚依存性について述べる。また、エネルギーの空間散逸・各計測方法の時間発展を含めた解釈についての概論も述べる。

第 5 章は、過渡的な局所熱力学的平衡を仮定し、電子比熱に着目した超短時間エネルギー散逸と全光型磁化反転について述べる。また、高効率に AOS 誘起可能な試料作製規則を提案する。

第 6 章にて本論文の成果のまとめと結論を述べる。

1-5 参考文献

- [1] Cisco, Cisco Visual Networking Index Complete Forecast Update, 2015-2020, <https://www.cisco.com/c/dam/en/us/solutions/collateral/service-provider/global-cloud-index-gci/white-paper-c11-738085.pdf>
- [2] 総務省, 平成 28 年版情報通信白書 <http://www.soumu.go.jp/johotsusintokei/whitepaper/h28.html>, 2017.11.13 (cited)
- [3] CERN, “Processing: What to record?” <https://cds.cern.ch/record/1541893>, n 2017.11.13 (cited)
- [4] F. Krausz, M. I. Stockman, Nat. Photo., 28 (2014)

- [5] C. V. Shank, Erich P. Ippen, Stanley L. Shapiro, “Picosecond Phenomena”, Springer (1978)
- [6] J.-Y. Bigot, W. Hübner, Th. Rasing, R. Chantrell, “Ultrafast Magnetism I”, Springer (2013)
- [7] A. H. Zewail, *The Journal of Physical Chemistry A.*, 104, 24 (2000)
- [8] E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. S. Yakovlev, S. Zherebtsov, T. Pfeifer, A. M. Azzeer, M. F. Kling, S. R. Leone & F. Krausz, *Nature*, 466, 739-743 (2010)
- [9] M. Stamenova, S. Sanvito, *Phys. Rev B, Condensed matter*, 88, 104423 (2013)
- [10] T. Satoh, Y. Terui, R. Moriya, B. A. Ivanov, K. Ando, E. Saitoh, T. Shimura, K. Kuroda, *Nat. Photo.*, 6, 662–666 (2012)
- [11] Y. Hashimoto, S. Daimon, R. Iguchi, Y. Oikawa, K. Shen, K. Sato, D. Bossini, Y. Tabuchi, T. Satoh, B. Hillebrands, G. E. W. Bauer, T. H. Johansen, A. Kirilyuk, Th. Rasing, E. Saitoh, *Nat. Commun.*, 8, 15859 (2017)
- [12] L. D. Landau, L. M. Lifshitz, *Physik. Zeits. Sowjetunion* 8: 153-169 (1935)
- [13] J. H. E. Griffiths, *Nature*, 158, 670-671 (1946)
- [14] E. Tzianaki, M. Bakarezos, G. D. Tsibidis, Y. Orphanos, P. A. Loukakos, C. Kosmidis, P. Patsalas, M. Tatarakis, N. A. Papadogiannis, *Optics Express*, 23, 13, 17191-17204 (2015)
- [15] 今村修武, 光磁気ディスク製造技術ハンドブック, サイエンスフォーラム 鍬谷書店 (1991)
- [16] 佐藤勝昭, 深道和明, 五味学, 片山利一, 阿部正紀, 光磁気ディスク材料—

基礎および次世代への展望, 工業調査会 (1993)

- [17] M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, L. V. Tanatarov *Sov. Phys. JETP*, 4, 2 (1957)
- [18] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, T. L. Perel' man, *Sov. Phys. JETP*, 39, 2, 375 (1974)
- [19] J. Hohlfeld, S. -S. Wellershoff, J. Gdde, U. Conrad, V. Jhnke, E. Matthias, *Chem. Phys.*, 251, 237-258 (2000)
- [20] J. Y. Bigot, V. Halte, J. C. Merle, A. Daunois, *Chem. Phys.*, 251, 181-203 (2000)
- [21] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.*, 76, 4250 (1996)
- [22] A. Eschenlohr, M. Battiato, P. Maldonado, N. Pontius, T. Kachel, K. Holldack, R. Mitzner, A. Fhlisch, P. M. Oppeneer, C. Stamm, *Nature Mater.*, 12, 332–336 (2013)
- [23] C. E. Graves, A. H. Reid T. Wang, B. Wu S. de Jong, K. Vahaplar, I. Radu, D. P. Bernstein, M. Messerschmidt, L. Mller, R. Coffee, M. Bionta, S. W. Epp, R. Hartmann, N. Kimmel, G. Hauser A. Hartmann, P. Holl, H. Gorke, J. H. Mentink, A. Tsukamoto, A. Fognini, J. J. Turner, W. F. Schlotter, D. Rolles, H. Soltau, L. Strder, Y. Acremann, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, Th. Rasing, J. Sthr, A. O. Scherz, H. A. Drr, *Nature Mater.*, 12, 293–298 (2013)
- [24] M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer, *Phys. Rev. Lett.*, 105, 027203 (2010)
- [25] T. J. Huisman, R. V. Mikhaylovskiy, A. Tsukamoto, Th. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. B*, 92, 104419 (2015)

- [26] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 047601 (2007)
- [27] A. Tsukamoto, S. Kogure, H. Yoshikawa, T. Sato, A. Itoh, “Ultrafast Magnetism I”, Springer, 334-336 (2014)
- [28] 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)
- [29] K. Vahaplar, A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, D. Hinzke, U. Nowak, R. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 117201 (2009)
- [30] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, *Nature Mater.*, **9**, 259 (2010)
- [31] J. H. Mentink, J. Hellsvik, D. V. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, O. Eriksson, M. I. Katsnelson, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057202 (2012)
- [32] J. Barker, U. Atxitia, T. A. Ostler, O. Hovorka, O. Chubykalo-Fesenko, R. W. Chantrell, *Scientific Reports*, **3**, 3262 (2013)
- [33] A. V. Kimel, “All-optical switching: Three rules of design”, *Nature Mater.*, **13**, 225–226 (2014)

第2章 フェリ磁性薄膜試料の作製と計測方法

2-1 GdFeCo 希土類-遷移金属系アモルファス合金フェリ磁性薄膜

本検討で用いられる GdFeCo 希土類-遷移金属系アモルファス合金フェリ磁性薄膜は、電子的・金属的・磁性的・構造的に特異な試料である。その最も特異かつ工学的に有益であった特徴の一つはフェリ磁性を有することである。フェリ磁性とは、逆方向ないしほぼ逆方向のスピンをもち2つの副格子磁化を内在し、その差として正味の磁化が発現する磁性である^[1]。一般に、希土類元素(Rare Earth: RE)-遷移金属(Transition Metal: TM)合金は結晶質、アモルファス(非結晶質)に関わらず、RE 原子の磁化と TM 原子の磁化は伝導電子を介して反平行に結合するフェリ磁性体となる。電子にもとづくミクロスコピックな磁気モーメント秩序を形成するためには方向を揃えるための交換相互作用が必要となる。この交換相互作用は RE-TM 系において、まず簡単に元素由来の磁気モーメントによって重ね合わせて捉えることができる。RE 原子の全角運動量は、Russell-Saunders 相互作用^[2]にもとづくモデルにしたがい軌道角運動量 L とスピン角運動量 S によって全角運動量 J を表現すると、軽希土類(La ~ Eu)では $J = L - S$ であるので J と S は反平行、重希土類(Gd ~ Lu)では $J = L + S$ であるので J と S は平行となる。したがって RE と TM の磁気モーメントは軽希土類では平行、重希土類では反平行に結合する。すなわち、軽希土類-TM 系は磁石などに用いられる強いフェロ磁性体となり、重希土類-TM 系はフェリ磁性体となる。

このような RE の磁化と TM の磁化はその電子の角運動量にもとづく磁気の起源が異なる。RE は Hund の規則^[3]に従って、Landé の原子の微細構造の説

明^[4]に経験的に導いた式 $g\sqrt{J(J+1)}\mu_B$ から有効磁気モーメントを算出できる。ここで g は g 因子、 μ_B はボーア磁子である。さらに Van Vleck と Frank の計算^[5]により、スピン軌道相互作用(SOI)を介した熱的多重項の準位励起による補正がなされるが、Gd や Tb は Hund の規則で十分に説明可能である。Gd では計算により有効磁気モーメントは 7.94 という大きな値を示し、実験値(7.46~8.2)とよく一致する。

対して TM は Hund の規則にもとづく値とは大きく異なり、 $g_e\sqrt{S(S+1)}\mu_B$ で表されるような値を示す。またこれは TM 合金においても成立し、Slater-Pauling 曲線として実験的に導出された^[6]。このプロットの縦軸は 0 K における飽和磁化の値を単位体積中の原子総数で割った飽和磁気モーメントに相当する値であり、横軸は原子当たりの平均電子数である。これは状態密度(density of states, DOS)におけるバンド構造により説明され、金属電子を記述する最も簡単な自由電子モデルにおける分子場の導入^[7]と電子計算機による Augmented Plane Wave 法を用いた金属のバンド計算^{[8]-[10]}にもとづく。

このように磁性の起源が全く異なる材料の合金である RE-TM の磁化の取り扱いには十分な検討が必要である。TM 同様、RE(Gd)^[11]や RE-TM(GdFe, GdCo)の非晶質なクラスターモデル^{[12][13]}においても most-localized Linear Muffin Tin Orbital 法により自己無撞着にバンド計算は試みられている。ただし、これらのバンド計算でも述べられている通り、本検討で用いる RE-TM 試料群はアモルファス合金である上、製膜条件・合金比によってその磁氣的性質を大きく変える。すなわち、本試料群においてバンド計算のみからフェルミ面近傍の有限温度の磁氣的性質の検討を行うのは困難である。

そこで、本論では系をより単純にするため RE に Gd を用いた。RE-TM はそれぞれの電子・原子的要因によりフェリ磁性をはじめとする様々なスピン構造・

磁性を発現する^[14]。しかし、Gd-TMにより形成されるフェリ磁性は、Gdの軌道角運動量 L が 0 であるため、原理的には完全に反平行に各副格子磁化が結合すると考えられる^{[14]・[16]}。

また、本研究における対象材料のもう一つ重要な特徴としてアモルファス合金について述べる。空間的なエネルギー散逸を論じる上で、元素が偏在するような長周期的な秩序を排除するためである。アモルファス状態における強磁性の発現には、結晶のような長周期的秩序は必要とせず、短範囲秩序状態により電子状態が決まると考えられている^[17]。アモルファス RE-TM 合金は製膜条件に依存し結晶バルク状試料に比べ疎になるものの、結晶バルク状試料に対し数%の差で凝縮し、短範囲秩序を形成する^{[17][18]}。本論文においては、結晶格子ではなくこのアモルファス状態における原子の短範囲秩序により形成される全秩序を格子として扱う。

本検討の主対象である GdFeCo フェリ磁性合金薄膜は、上記の様に複雑な系を持ち、取り扱う計測・誘起現象ごとに捉えるべき系が異なる。たとえば、磁場で駆動されるのは全磁気モーメントの合計としての正味の磁化である。その磁化は、希土類元素(Rare Earth: RE)と遷移金属(Transition Metal: TM)元素由来の副格子磁化が反平行に結合している。アモルファス合金におけるこの反平行結合は Pauli の排他原理や Hund の規則にもとづく交換相互作用により生じ、電子軌道とスピン・軌道磁気モーメント、その状態密度分布が密接に絡んでいる。光学効果・磁気光学効果を用いると波長に対応した伝導率(誘電率)・エネルギー準位ごとの計測が可能となり元素識別も可能である。たとえば可視光域での磁気光学応答では主に遷移金属の d 軌道に由来した応答を計測することになる。本章ではこの様に電子軌道・磁氣的に複雑な混合した系を持つ GdFeCo 合金薄膜の作製方法(2-2)と本論で実施した各計測(2-3~6)について述べる。

2-2 マグネトロンスパッタ法による多層薄膜試料作製

2-2 マグネトロンスパッタ法による多層薄膜試料作製

本節では、マグネトロンスパッタ法(Magnetron Sputtering) による薄膜試料作製方法と対象作製試料である RE-TM 垂直磁化薄膜について述べる。全光型磁化反転現象(AOS) は、現在 GdFeCo アモルファス RE-TM フェリ磁性薄膜において発見され^[19]、同試料上で明瞭に誘起されることが確認されている^[20]。RE-TM 系の垂直磁気異方性フェリ磁性薄膜は 1973 年に IBM の P. Chauadhari らが、ガラス基板上にスパッタ法を用いてアモルファス Gd-Co 合金薄膜が垂直磁化の強磁性膜を作製^[21] したのを初めとして、光熱磁気記録材料^[22]や磁気バブルメモリ材料^{[23][24]}として一部実用化にまで至り、今なお代表的な磁気光学材料の一つである。RE-TM 系垂直磁化薄膜では小さな円筒状磁区を保持することができる。本節では、このような RE-TM アモルファス垂直磁化膜である GdFeCo 薄膜をマグネトロンスパッタ法により作製した。その方法と特徴について述べる。

スパッタ法は高真空下において加速希ガスイオンを母材に衝突させ、その運動エネルギーにより母材から飛沫した原子あるいは分子を堆積することにより薄膜を形成する方法である。スパッタ法による薄膜作製は基板と薄膜の付着力が強く、高融点材料も含め母材の選択範囲が広く、同一チャンバー内での多元製膜も可能である。また、多元製膜において特に膜厚や組成制御が比較的容易であり、さらに電力・ガス圧・基板温度、その作製工程を自動制御することで、組成・膜厚変化により大きく磁気特性を変える^{[25]-[28]}フェリ磁性体においても、再現性の高い試料作製を行うことが可能である。さらに母材裏に磁極を配することでスパッタリング効率の高めるマグネトロンスパッタ方式は、 γ 電子のカソード近傍への閉じ込めにより、さらに基板温度の上昇を抑える。これにより数~0.1 Pa

程度のガス圧でのスパッタリングが可能であり、数原子層毎に比較的均質である高密度な薄膜が得られ、高密度なプラズマにより高速製膜が可能である。たとえば、本論で用いた製膜装置での磁性層(10 nm)の製膜時間は数秒である。本プロセスにより、結晶に対して数%程度密度が疎になるものの、蒸着法よりも密度の高いアモルファス試料を作製することができる^[18]。

本検討では、ULVAC, Inc. 製多元 Magnetron Sputtering System SMO-01S を用い薄膜試料の作製を行った。既存の AOS や超短時間現象に関する^{[19][20][29][32]}などの重要な計測で用いられた試料も、本論の試料群と同様にこのシステムによって作製したものである。Sputtering Gas には Ar を用い、金属試料層 (Gd, Fe, Co, Cu, Pt) には DC マグネトロンスパッタ法を用いて必要に応じ同時スパッタリング(co-sputtering)を行った。SiN と AlTi 試料には RF マグネトロンスパッタ法を用いた。図 2-1 に製膜装置の概観と各層の代表的製膜条件を示す。全母材とも 99.9%以上の純度を有している。

2-3 量子干渉素子による正味の磁化量と磁化特性の評価

本節では、作製した薄膜試料の量子干渉素子(Superconducting QUantum Interference Device: SQUID)による試料振動型磁力計(Vibrating Sample Magnetometer : VSM)方式を用いた磁化計測について述べる。均一磁界中に置いた試料を一定の周波数・振幅で振動させ、試料付近に配置した検出コイルに電磁誘導される起電力をロックイン検出することで、標準試料に対し相対的に磁化を計測することができる。この計測原理にもとづいた計測装置を試料振動型磁力計(VSM)^{[33][34]}という。さらに、本検討で用いる GdFeCo フェリ磁性垂直磁化薄膜の磁化 M_{net} はその試料形状と磁化補償点近傍であることから極めて小さ

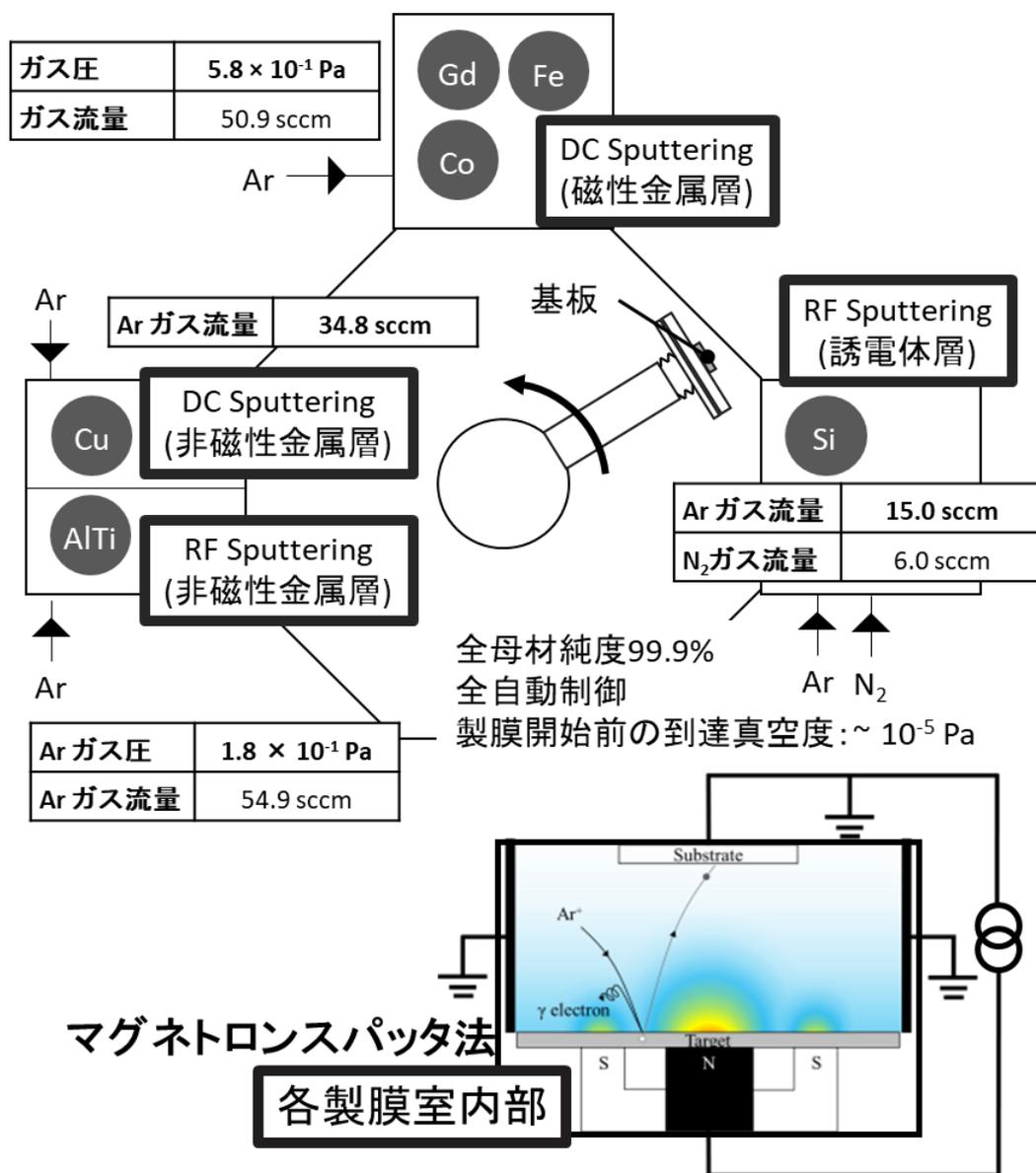


図 2-1 マグネトロンスパッタ方式の製膜装置 SMO-01S の概観と試料群の作製条件（製膜開始前の到達真空度は $\sim 2.2 \times 10^{-5}$ Pa である）

い。大気中での検出コイルによる検出は非常に困難である。そこで本検討では、より高感度に磁場変化を計測可能な超伝導弱結合(Josephson 接合)素子^[35]を検出系にもつ振動試料型磁力計 Quantum Design Inc. 製 Magnetic Property Measurement System 3 (MPMS3)を用いた。装置の基本的構成を図 2-2 に示す。

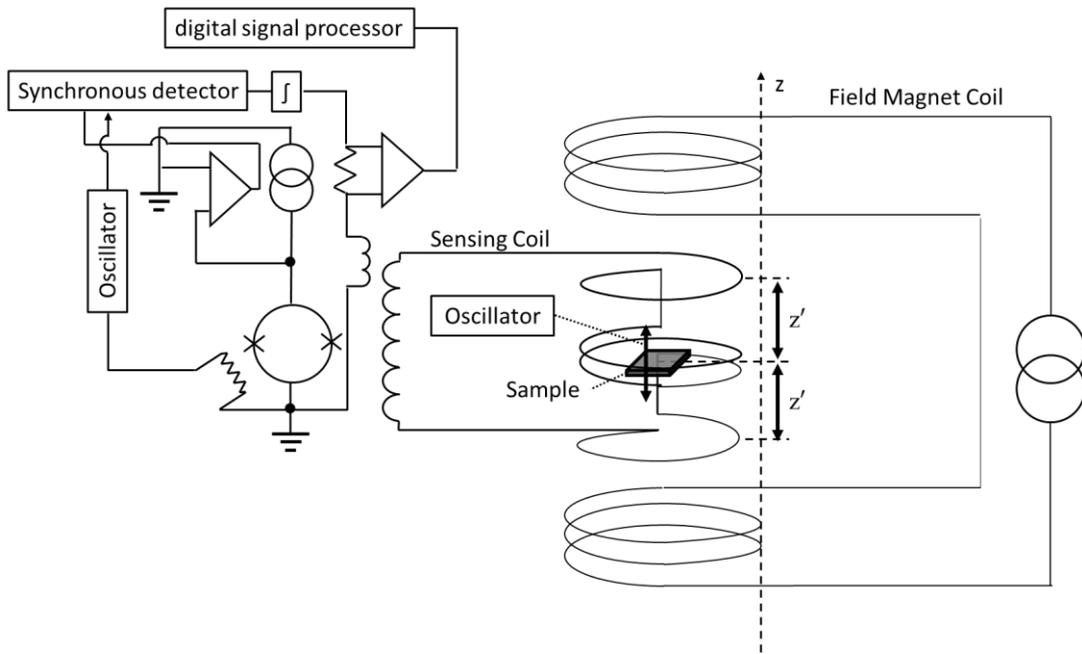


図 2-2 MPMS3 (SQUID-VSM) の検出システムの模式図(参考文献[36]にもとづく)

今、一軸磁気異方性を有し、薄膜面に対して垂直に磁化(膜面垂直磁化)した試料を考える。検出コイルを鎖交する磁束 Φ は、 $\Phi = \int B \, dS = \int \mu_0(H + M) \, dS$ である。 S は鎖交面積、 H は磁場、 M は磁化である。検出コイル近傍の磁束分布を Taylor 展開すると

$$\Phi = \Phi_0 + \frac{\partial \Phi}{\partial z} z + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} z^2 + \dots \quad (2-1)$$

とあらわせる。図の様なコイル配置(2次微分型^[37])では、逆手方向のコイル1巻に対し z' 隔てた位置で順手向きに2巻さらに z' 離れた位置に再度逆手のコイル1巻が位置している。この際それぞれの z での磁束は0次の項、1次の項が打ち消し合い、2次の項 $z'^2 \times \partial^2 \Phi / \partial z^2$ が残る。これにより、印加磁場を含めた外部からの磁束成分は消え、検出コイル近傍で大きく変化する試料由来の磁束成分が高感度に抽出される。さらに、VSM では前述の通り試料の物理的振動 ωt に対応した $\Phi(\omega t)$ の成分のみをロックイン検出する。これにより、より高感度な計測

が可能となる。本計測では $f(=\omega/2\pi)=14[\text{Hz}]$ とした。この際、Faraday の電磁誘導の法則から求められる誘導電流は $z'^2/L \times \partial^2\phi/\partial z^2$ となる。この誘導電流に対応して再度コイルから生成された磁場は、Josephson 素子を鎖交する磁束 ϕ_J を生成し、その磁束の数に応じて接合間を流れるトンネル電流 $I = I_c \sin \varphi(t, 0) \{ \sin(\pi\phi_J/\phi_{J0}) / (\pi\phi_J/\phi_{J0}) \}$ の位相差 $\varphi(t, 0)$ が変調される。本装置はこれを利用し、磁性体を作る磁束の本数、量子磁束(約 $2.07 \times 10^{-15} \text{ Wb}$) を単位として測定する。

また、VSM では印加磁場がゼロでも磁化測定が原理的に可能であるため、残留磁化として自発磁化を測定できる。加えて、測定原理の特徴から以下のように広い環境範囲での測定が可能となる。本研究で使用した MPMS3 の測定環境、および精度は、真空度 $\sim 1 \text{ kPa}$ 、測定感度($\sim 1 \times 10^{-8} \text{ emu}$ (時間平均 10 秒未満)), 振幅周期 14 Hz ($\pm 2 \text{ cm}$), 磁場制御($\pm 70 \text{ kOe}$ (磁場可変精度 0.33 Oe), 磁場均一度: 4 cm の範囲で 0.01%) 温度制御 ($1.8 \text{ K} \sim 400 \text{ K}$), 温度精度 $\pm 0.5 \text{ K}$ 以下)である。MPMS3 を用いて GdFeCo 試料群を計測した結果、既存の報告同様^[38]、使用した全試料において基本的に極めて良好に膜面垂直に自発磁化を有している垂直磁気異方性を確認できる。膜面垂直に磁場を印加した際の代表的な磁化曲線を図 2-3 に示す。試料の積層構造は SiN (60 nm) / Gd₂₂Fe_{68.3}Co_{9.8} (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub. である。

これまでに、希土類元素(Rare Earth: RE)-遷移金属(Transition Metal: TM)合金系のアモルファス合金薄膜の垂直磁気異方性の起源に関し、提案されたモデルは以下の 3 つに大別される^{[39][40]}。(モデル 1) 強磁性超薄膜界面へのドーピング効果: 強磁性超薄膜界面へのドーピングによってバンドの占有率が変わるため、垂直磁気異方性も変化するというモデル。(モデル 2) 強磁性超薄膜のバンド分裂効果: 高電界下では、強磁性超薄膜のバンドが分裂するために、その変化に

伴い垂直磁気異方性も変化するというモデル。(モデル 3) 強磁性超薄膜界面における Rashba 効果：界面の Rashba 効果が強磁性体の交換分裂と競合することで垂直磁気異方性が発現し、Rashba 効果の電界依存性を通じて垂直磁気異方性が変化するというモデル。以上の様に、垂直磁気異方性の起源は十分な理解が得られておらず、その磁化構造について今なお研究が進められている^[41]。

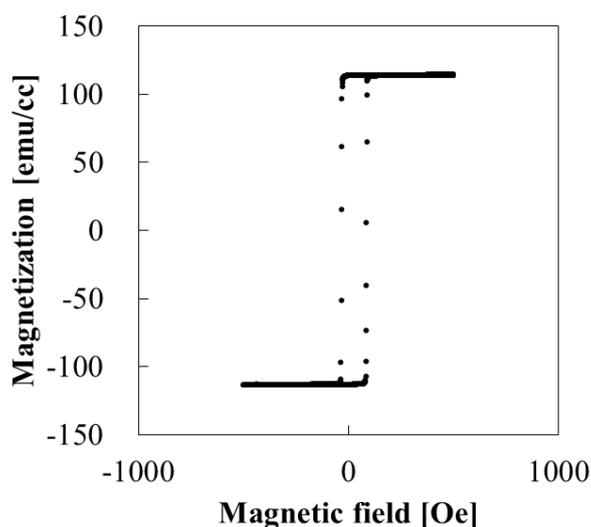


図 2-3 SiN (60 nm) / Gd₂₂Fe_{68.3}Co_{9.8} (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub.における VSM で計測した磁場に対する磁化曲線

2-4 磁気光学効果による副格子磁化特性評価

本節では、副格子磁化の磁化特性評価を行うために用いた磁気光学効果^{[42]-[45]}の原理と計測方法について記述する。磁気光学効果は光と物質の相互作用において特に磁気的原因(磁性)によって物質を伝搬した光の強度や偏光が変調される効果のことである。RE-TM または RE-TM 酸化物材料は光磁気材料と呼ばれるように、この効果が極めて強い材料である^{[17][22][23]}。たとえば RE-TM 合金では試料表面反射型の磁気光学 Kerr 回転角で 0.5 deg. 程度にもなり、偏光板を用いて十分に角度分解し、検出可能である。また試料によっては、用いる波長ごと

に磁化応答を元素識別計測することが可能である^{[46][47]}。

連続媒体中の光の伝わり方は Maxwell の方程式で記述される。光は電磁波であり、電場と磁場との関係を与える 2 階の微分方程式である。この時媒体の応答を与えるのが、誘電率 ε または伝導率 σ である。光の周波数を含む強磁性共鳴の振動数以上の周波数では巨視的な磁化はほとんど磁場に追従できず、透磁率を $\mu \cdot \mu_0$ としたときの比透磁率 μ は 1 として扱う。

誘電率は電束密度 \mathbf{D} と電場 \mathbf{E} の関係を与える量であり、 $\mathbf{D} = \tilde{\varepsilon} \varepsilon_0 \mathbf{E}$ とあらわされる。 \mathbf{D} と \mathbf{E} はベクトル(階数 1 のテンソル)なので、その関係を与える量である $\tilde{\varepsilon}$ は階数 2 のテンソルで、 3×3 の行列、9 個のテンソル成分で表現される。同様に伝導率 σ も電流密度 \mathbf{J} と電場 \mathbf{E} の関係 $\mathbf{J} = \tilde{\sigma} \mathbf{E}$ を与える量なので階数 2 のテンソルで表現される。

$$\tilde{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (2-2)$$

$$\tilde{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{bmatrix} \quad (2-3)$$

一般に $\tilde{\varepsilon}$, $\tilde{\sigma}$ の成分は複素数なので、それぞれ $\varepsilon_{ij} = \varepsilon'_{ij} + i\varepsilon''_{ij}$, $\sigma_{ij} = \sigma'_{ij} + i\sigma''_{ij}$ と表現される。

$\tilde{\varepsilon}$ の成分と $\tilde{\sigma}$ の成分との間には Kramers-Kronig の関係 $\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + i\sigma_{ij}/\omega$ が成り立つ^[48]。 δ_{ij} は Kronecker delta と呼ばれ、 $i = j$ ならば 1, $i \neq j$ ならば 0 を表す。 ω の単位は [rad/s] を用いる。比誘電率と伝導率は上式を用いて変換可能であるが、一般には絶縁体では $\tilde{\varepsilon}$ を、金属においては $\tilde{\sigma}$ を用いる。金属の場合、Drude の式^{[49][50]}が成り立ち、 $\omega \rightarrow 0$ の極限すなわち直流において $\varepsilon_{xx} (= 1 - \omega_p^2/\omega(\omega + i\gamma))$ は自由電子の遮蔽効果のため発散してしまうが、 $\sigma_{xx} (= 1 -$

$i\varepsilon_0\omega_p^2/(\omega + i\gamma)$ は有限の値 $\varepsilon_0\omega_p^2/\gamma$ に収束するためである。

本検討で用いる材料はアモルファス合金であり、等方性の物質である。以下では等方性物質の磁化 \mathbf{M} が z 軸において一軸磁気異方性を有する場合を考える。この場合は z 軸のまわりの任意の回転に対して不変であるから、例えば 90 deg. の回転 C_4 に対し $C_4^{-1}\tilde{\varepsilon}C_4 = \tilde{\varepsilon}$ という関係が成り立ち、

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} \quad (2-4)$$

$$\varepsilon_{yx} = -\varepsilon_{xy} \quad (2-5)$$

$$\varepsilon_{xz} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zx} = \varepsilon_{zy} = 0 \quad (2-6)$$

が導かれる。したがって磁化のある時、等方性物質のテンソルは次のように書ける。

$$\tilde{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx}(M) & \varepsilon_{xy}(M) & 0 \\ -\varepsilon_{xy}(M) & \varepsilon_{xx}(M) & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz}(M) \end{bmatrix} \quad (2-7)$$

磁化による誘電率テンソルの変位を想定しているので、 $\varepsilon_{ij}(M)$ を次式のように M で Maclaurin 展開する。

$$\varepsilon_{ij}(M) = \varepsilon_{ij}^{(0)} + \sum_n \frac{1}{n!} \varepsilon_{ij}^{(n)} M^n \quad (2-8)$$

ここで Onsager によって導かれた相反関係式 $\varepsilon_{ij}(-M) = \varepsilon_{ji}(M)$ を考慮すると、対角成分は M の偶数次のみ、非対角成分は M の奇数次のみで展開できることが導かれる。すなわち、

$$\varepsilon_{xx}(M) = \varepsilon_{xx}^{(0)} + \sum_n \frac{1}{(2n)!} \varepsilon_{xx}^{(2n)} M^{2n} \quad (2-9)$$

$$\varepsilon_{xy}(M) = \sum_n \frac{1}{(2n+1)!} \varepsilon_{xy}^{(2n+1)} M^{2n+1} \quad (2-10)$$

$$\varepsilon_{zz}(M) = \varepsilon_{zz}^{(0)} + \sum_n \frac{1}{(2n)!} \varepsilon_{zz}^{(2n)} M^{2n} \quad (2-11)$$

ここに $\varepsilon_{ij}^{(2n)}$ は M に独立な n 次の展開係数である。下記に述べるように $\varepsilon_{xy}(M)$ が

Faraday 効果や Kerr 効果をもたらし、 $\varepsilon_{xx}(M)$ と $\varepsilon_{zz}(M)$ の差が磁気複屈折 (Cotton-Mouto 効果)の原因となる。

つぎに上記のような誘電率テンソルをもった媒質中を伝搬する光について記述する。Maxwell の方程式より

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \quad (2-12)$$

$$\text{rot}\mathbf{H} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \quad (2-13)$$

ここに簡単のため、伝導電流も分極電流(変位電流)の中に繰り込むことにより $\mathbf{J}=0$ とおく。 $\mathbf{D} = \tilde{\varepsilon}\varepsilon_0\mathbf{E}$, $\mathbf{B} = \mu_0\mathbf{H}$ より

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\mu_0\frac{\partial\mathbf{H}}{\partial t} \quad (2-14)$$

$$\text{rot}\mathbf{H} = \tilde{\varepsilon}\varepsilon_0\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} \quad (2-15)$$

上式の解として、波数ベクトルを \mathbf{K} として次式の平面波を考える。

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} e^{i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}} \quad (2-16)$$

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 e^{-i\omega t} e^{i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}} \quad (2-17)$$

ここに \mathbf{E}_0 , \mathbf{H}_0 は時間や距離に依存しない定数ベクトルである。また、

$$\text{rot}\mathbf{E} = \begin{bmatrix} i & j & k \\ \frac{\partial}{\partial x} & \frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial z} \\ E_x & E_y & E_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} iK_x & j & k \\ E_x & E_y & E_z \end{bmatrix} = i\mathbf{K} \times \mathbf{E} \quad (2-18)$$

$$\text{rot}\mathbf{H} = \begin{bmatrix} i & j & k \\ \frac{\partial}{\partial x} & \frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial z} \\ H_x & H_y & H_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} iK_x & j & k \\ H_x & H_y & H_z \end{bmatrix} = i\mathbf{K} \times \mathbf{H} \quad (2-19)$$

である。すなわち、

$$\mathbf{K} \times \mathbf{E} = \omega \mu_0 \mathbf{H} \quad (2-20)$$

$$\mathbf{K} \times \mathbf{H} = -\omega \tilde{\epsilon} \epsilon_0 \mathbf{E} \quad (2-21)$$

となる。両式から

$$\mathbf{K} \times \mathbf{H} = \mathbf{K} \times \frac{1}{\omega \mu_0} (\mathbf{K} \times \mathbf{E}) = \frac{1}{\omega \mu_0} \mathbf{K} \times \mathbf{K} \times \mathbf{E} \quad (2-22)$$

$$\rightarrow \mathbf{K} \times \mathbf{K} \times \mathbf{E} = -\omega^2 \tilde{\epsilon} \epsilon_0 \mu_0 \mathbf{E} = -\tilde{\epsilon} \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \mathbf{E} \quad (\because \epsilon_0 \mu_0 = \frac{1}{c^2})$$

$$(\mathbf{E} \cdot \mathbf{K}) \mathbf{K} - |\mathbf{K}|^2 \mathbf{E} + (\omega/c)^2 \tilde{\epsilon} \mathbf{E} = 0 \quad (2-23)$$

として固有方程式を得る。ここで複素屈折率 $\hat{N} = n + ik$ を導入する。は屈折率 n 、 k は消光係数である、媒質中において波数 K は

$$(\mathbf{E} \cdot \mathbf{K}) \mathbf{K} - |\mathbf{K}|^2 \mathbf{E} + (\omega/c)^2 \tilde{\epsilon} \mathbf{E} = 0 \quad (2-24)$$

が得られる。 $K = \omega \hat{N}/c$ で表される。波数ベクトルの向きに平行、かつ長さが \hat{N} であるような複素屈折率ベクトル $\hat{\mathbf{N}}$ を用いると、 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega(t - \hat{\mathbf{N}} \cdot \mathbf{r}/c)}$ となり、固有方程式は $(\mathbf{E} \cdot \hat{\mathbf{N}}) \hat{\mathbf{N}} - \hat{N}^2 \mathbf{E} - \tilde{\epsilon} \mathbf{E} = 0$ によって記述できる。磁化 \mathbf{M} は z 軸方向にある場合、 z 軸に平行に進む波 ($\mathbf{N} // z$) を考えると (Faraday 配置)、 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp -i\omega(t - \hat{\mathbf{N}}z/c)$ とあらわされるので固有方程式は

$$\begin{bmatrix} \hat{N}^2 - \epsilon_{xx}(M) & -\epsilon_{xy}(M) & 0 \\ \epsilon_{xy}(M) & \hat{N}^2 - \epsilon_{xx}(M) & 0 \\ 0 & 0 & -\epsilon_{zz}(M) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = 0 \quad (2-25)$$

として $E_z = 0$ 、永年方程式から $(\hat{N}^2 - \epsilon_{xx}(M))^2 + \epsilon_{xy}(M)^2 = 0$ を得る。 \hat{N}^2 の固有値は $\hat{N}_{\pm}^2 = \epsilon_{xx}(M) \pm i\epsilon_{xy}(M)$ であり、この固有関数は

$$\mathbf{E} = \frac{\mathbf{E}_0}{\sqrt{2}} (\mathbf{i} \pm \mathbf{j}) e^{-i\omega(t - \frac{\hat{N}_{\pm}}{c}z)} \quad (2-26)$$

となる。 $\hat{N}_{\pm} = (n \pm \Delta n/2) + i(k \pm \Delta k/2)$ 、 $\Delta \hat{N} = \hat{N}_+ - \hat{N}_- = \Delta n + i\Delta k$ であるから、の固有値 $\hat{N}_{\pm}^2 = \epsilon_{xx}(M) \pm i\epsilon_{xy}(M)$ と比較して

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon'_{xx} &= n^2 - k^2 \\ \varepsilon''_{xx} &= 2nk \\ \varepsilon'_{xy} &= n\Delta k + k\Delta n \\ \varepsilon''_{xy} &= k\Delta k - n\Delta n \end{aligned} \right\} \quad (2-27)$$

となる。金属を対象とした場合には、伝導率 σ_{ij} で(2-27) 式を捉える必要がある。

そこで、上式と同様に Kramers-Kronig の関係 $\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + i \sigma_{ij} / \omega \varepsilon_0$ を用いて伝導率 σ_{ij} に変換し、導出すると

$$\left. \begin{aligned} \sigma'_{xx} &= 2\omega\varepsilon_0nk \\ \sigma''_{xx} &= -\omega\varepsilon_0(n^2 - k^2 - 1) \\ \sigma'_{xy} &= \omega\varepsilon_0(k\Delta k - n\Delta n) \\ \sigma''_{xy} &= -\omega\varepsilon_0(n\Delta k + k\Delta n) \end{aligned} \right\} \quad (2-28)$$

となる。よって、

$$\Delta n = \frac{k\varepsilon'_{xy} - n\varepsilon''_{xy}}{n^2 + k^2} = -\frac{1}{\omega\varepsilon_0} \frac{n\sigma'_{xy} + k\sigma''_{xy}}{n^2 + k^2} \quad (2-29)$$

$$\Delta k = \frac{n\varepsilon'_{xy} + k\varepsilon''_{xy}}{n^2 + k^2} = \frac{1}{\omega\varepsilon_0} \frac{k\sigma'_{xy} - n\sigma''_{xy}}{n^2 + k^2} \quad (2-30)$$

が得られる。ここに \mathbf{i}, \mathbf{j} は x, y 方向の単位ベクトルである。 E_+, E_- はそれぞれ右円偏光, 左円偏光に対応する。すなわち誘電率テンソル $\tilde{\varepsilon}(\mathbf{M})$ をもった媒質中を \mathbf{M} と平行に伝搬する波の固有状態は右回りまたは左回りの円偏光であることが示された。ここでもし、誘電率テンソルの非対角成分 $\varepsilon_{xy}(\mathbf{M})$ がなければ固有値 \hat{N}_\pm^2 は $\varepsilon_{xx}(\mathbf{M})$ となり、円偏光は固有状態ではなく、旋光性や円二色性は生じない。つまり、 $\varepsilon_{xy}(\mathbf{M})$ の非対角成分に由来した磁気情報を旋光角および楕円率から計測する。

$$\mathbf{E}_{out} = \frac{\mathbf{E}_0}{\sqrt{2}} e^{-i\omega(t - \frac{\hat{N}_\pm z}{c})} \left\{ e^{i\omega \frac{\hat{N}_+ z}{c}} \mathbf{r} + e^{i\omega \frac{\hat{N}_- z}{c}} \mathbf{l} \right\} \quad (2-31)$$

すなわち z 軸のまわりに $\theta = -\omega \hat{N}_+ z / 2c$ だけ回転することを意味する。よって直交座標系に変換して比較すると

$$\theta_F = -\frac{\omega}{2c} \frac{k\varepsilon'_{xy} - n\varepsilon''_{xy}}{n^2 + k^2} z = \frac{1}{2c\varepsilon_0} \frac{n\sigma'_{xy} + k\sigma''_{xy}}{n^2 + k^2} z \quad (2-32)$$

$$\eta_F = -\frac{\omega}{2c} \frac{n\varepsilon'_{xy} + k\varepsilon''_{xy}}{n^2 + k^2} z = -\frac{1}{2c\varepsilon_0} \frac{k\sigma'_{xy} - n\sigma''_{xy}}{n^2 + k^2} z \quad (2-33)$$

と表せる。また、光の吸収係数 $\alpha = 2\omega\kappa/c$ の差(磁気円二色性)は $\Delta\alpha = 2\omega\Delta\kappa/c = -4\eta_F/z_a$ である。以上より磁気光学効果の旋光性、円二色性は誘電率、伝導率の非対角項の複素成分により表すことができる。

同様に垂直入射の極 Kerr 効果においても下記のようにして導出できる。

$$\begin{aligned} \theta_K &= n_0 \frac{n(n_0^2 - n^2 + 3\kappa^2)\varepsilon'_{xy} + k(n_0^2 - 3n^2 + k^2)\varepsilon''_{xy}}{\{(n_0^2 - n^2 - k^2)^2 + 4n_0^2 k^2\}(n^2 + k^2)} \\ &= n_0 \frac{\varepsilon_0}{\omega} \frac{k(n_0^2 - 3n^2 + k^2)\sigma'_{xy} - n(n_0^2 - n^2 + 3\kappa^2)\sigma''_{xy}}{\{(n_0^2 - n^2 - k^2)^2 + 4n_0^2 k^2\}(n^2 + k^2)} \end{aligned} \quad (2-34)$$

$$\begin{aligned} \eta_K &= n_0 \frac{-\kappa(n_0^2 - 3n^2 + \kappa^2)\varepsilon'_{xy} + n(n_0^2 - n^2 + 3\kappa^2)\varepsilon''_{xy}}{\{(n_0^2 - n^2 - \kappa^2)^2 + 4n_0^2 \kappa^2\}(n^2 + \kappa^2)} \\ &= n_0 \frac{\varepsilon_0}{\omega} \frac{n(n_0^2 - n^2 + 3\kappa^2)\sigma'_{xy} - k(n_0^2 - 3n^2 + k^2)\sigma''_{xy}}{\{(n_0^2 - n^2 - \kappa^2)^2 + 4n_0^2 \kappa^2\}(n^2 + \kappa^2)} \end{aligned} \quad (2-35)$$

金属における伝導率 σ は、伝導電子を粒子の散乱を含む運動方程式として扱い、

Ohm の法則の形で $\sigma = \frac{j}{E} = \frac{e^2 n \tau}{m}$ として Drude model^{[49][50]}により説明が試みられた。

そして本式は Pauri の排他律を満たすためにバンド計算にもとづいて、

$$\sigma = \frac{j}{E} = -\frac{e^2}{8\pi^3 \hbar} \int \boldsymbol{\tau}(\mathbf{k}) \mathbf{v}(\mathbf{k}) \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} d\mathbf{k} \quad (2-36)$$

と粒子流密度 j から表現される。関数 f は Fermi 気体^[51]・Fermi 液体^[52]において用いられる Fermi 分布関数であり、 f が $k = 0$ のまわりに反転対称性をもち、積分が第一 Brillouin Zone 全体で行われるとすると

$$\frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} = \frac{\partial f}{\partial E} \hbar \mathbf{v} \approx -\delta(E - E_F) \quad (2-37)$$

$$d\mathbf{k} = df_E dk_{\perp} = df_E \frac{dE}{\hbar v(\mathbf{k})} \quad (2-38)$$

であり、金属の電気伝導度 σ は k 空間の Fermi 面近傍の状態密度(Density of

State : DOS)とその Fermi 分布関数により Fermi 面 E_F に関する表面積分で表されることになり、微視的には電子速度 $v(E_F)$ と緩和時間 $\tau(E_F)$ としてフェルミ面における成分だけが現れる。

電子状態がバンドで記述できる系については、久保公式^[53]にもとづいて誘電率テンソルの成分を求める式は Wang, Callaway により導出された^[54]。Wang と Callaway は Ni のバンドをもとにスピン軌道相互作用とフェルミ面と optical conductivity について論じている。[001] にスピンが向いている系を仮定すると、 $H_{SOI} = (\hbar/4m^2c^2)\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V(r)$, となる。 $\boldsymbol{\pi} = \mathbf{p} + (\hbar/4mc^2)\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V(r)$ は kinetic 運動量演算子であり、 \mathbf{p} は canonical 運動量演算子 $\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V(r)$ であり、スピン軌道相互作用の寄与である。また、現象論的に緩和時定数が一定の場合、久保公式が適用できる。ここに伝導率の複素成分を示す。

$$\begin{aligned} \sigma_{\alpha\beta}(\omega) = & \frac{iNe^2}{(\omega + i/\tau)} \left(\frac{1}{m^*} \right)_{\alpha\beta} \\ & - \frac{2ie^2}{\hbar m^2} \sum_{lk} \sum_{nk} \left\{ \frac{(\omega + i/\tau)}{\omega_{nl}} \text{Re}(\pi_{ln}^\alpha \pi_{nl}^\beta) \right. \\ & \left. + \text{Im}(\pi_{ln}^\alpha \pi_{nl}^\beta) \right\} \frac{1}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i/\tau)^2} \end{aligned} \quad (2-39)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{\alpha\alpha}(\omega) = & \frac{iNe^2}{(\omega + i/\tau)} \left(\frac{1}{m^*} \right)_{\alpha\alpha} \\ & - \frac{2ie^2}{\hbar m^2} (\omega + i/\tau) \sum_{lk} \sum_{nk} \frac{|\pi_{ln}^\alpha|^2}{\omega_{nl}} \frac{1}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i/\tau)^2} \end{aligned} \quad (2-40)$$

ω_{nl} はバンド n と l の差分($\omega_{nl} = \hbar^{-1} [E_n(\mathbf{k}) - E_l(\mathbf{k})]$)、 m^* は光学的有効質量である。 $\pi_{ln}^\alpha = \langle l | \boldsymbol{\pi}^\alpha | n \rangle$ 。 $iNe^2/(\omega + i/\tau) (1/m^*)_{\alpha\beta}$ は有効質量の異方性による項なので以降無視する。さらに $\tau \rightarrow \infty$ にすると非対角成分の虚数成分は

$$\begin{aligned} \sigma''_{\alpha\beta}(\omega) = & \text{Im}(\sigma_{\alpha\beta}) \\ = & - \frac{\pi e^2}{2\hbar\omega m^2} \sum_{lk} \sum_{nk} \left\{ \frac{(\omega + i/\tau)}{\omega_{nl}} \pi_{ln}^{+2} - \pi_{nl}^{-2} \right\} \frac{1}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i/\tau)^2} \end{aligned} \quad (2-41)$$

となる。したがって、バンド間遷移を考慮する対象材料では前述のように励起エネルギーに対応する ω により計測される対象系が決定される。

このように光学・磁気光学の観点から励起・計測に用いる選択波長は極めて重要である。本研究で対象とする Gd-FeCo における Fermi 面近傍のスピンの偏極は Ni と同じ遷移金属 Fe, Co の 3d 軌道が支配的であり^[55]、希土類の副格子磁化の起源は Fermi 面から 4~5 eV 以上と深い 4f 軌道が主となる^{[12][13][30][56]}。すなわち GdFeCo では可視光域の波長を用いて遷移金属(TM)系の副格子磁化(M_{TM})特性を、紫外域の波長を用いて希土類元素(RE)系の副格子磁化特性(M_{RE})を計測することが出来る^[47]。磁気光学効果の応答は計算により Cu や Al などの単純な金属においては遮蔽効果により電子相関を無視し、バンド計算により電子状態を予測し、伝導率の算出が容易である。しかし遷移金属 Fe, Co と希土類 Gd は共に電子相関が強い元素である。実際 Fermi 面近傍の RE-TM 系の電子状態は合金比により大きく変化する^{[12][13][46][47]}。そのため、一次近似的バンド計算による Fermi 面近傍の具体的状態を明らかにすることは極めて難しく、それらのアモルファス磁性合金である本試料の計算検討は更に難解になる。すなわち、実験事実にもとづく検討が必要かつ極めて重要である。

実際、磁気光学効果の回転角(Faraday 回転角： θ_F , Kerr 回転角： θ_K)を光-電気計測する場合、現在偏光子とフォトダイオードを組み合わせて用いるのが簡便かつ一般的手法である。本方法を用いた計測システムを図 2-4 に示す。試料を透過もしくは反射した Probe 光の $\Delta\theta_F$ もしくは $\Delta\theta_K$ による偏光面の変化を、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にて検出する方法がその一つであり、差動検出法という。入射光の偏光方向を x 軸としたとき透過光もしくは反射光の振幅変化率の x 成分を $r_x = |r_x|(\cos\phi_x + i\sin\phi_x)$ 、y 成分を $r_y = |r_y|(\cos\phi_y + i\sin\phi_y)$ とする。ここで、45° の差動検出法を

2-4 Magneto-Optical measurement による副格子磁化計測

考える。1つの検出器の出力は $|r_x \cos \pi/4 + r_y \sin \pi/4|^2$ に比例し、もう1つの検出器の出力は $|-r_x \sin \pi/4 + r_y \cos \pi/4|^2$ に比例する。このため、2つの検出器の出力の和 Σ_{sig} は $1/2(I + 2|r_x||r_y| \cos \phi) + 1/2(I - 2|r_x||r_y| \cos \phi) = I$ に比例し、検出器の出力の差 Δ_{sig} は $1/2(I + 2|r_x||r_y| \cos \phi) - 1/2(I - 2|r_x||r_y| \cos \phi) = 2|r_x||r_y| \cos \phi = 2I\theta$ となる。ここに I は透過光や反射光の光強度である。これにより回転角は $\theta = \Delta_{sig} / 2\Sigma_{sig}$ によって検出できる。

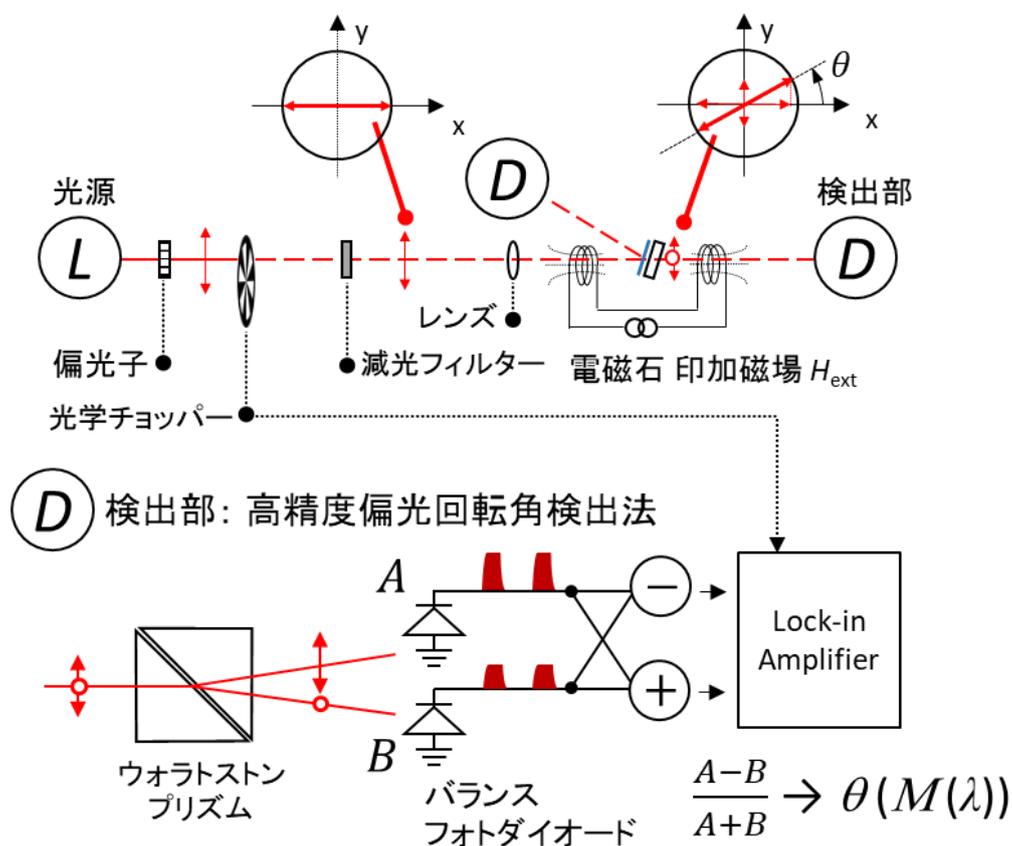


図 2-4 磁気光学効果の差動検出計測システム

2-5 All-Optical Pump Probe 法による時間分解磁気光学応答計測

本節では、sub-ps ~ 100 ps 程度の磁化の時間変化を時間分解計測するために超短パルス光を用いた磁気光学効果にもとづく All-Optical Pump Probe 法について述べる。光を用いた時間分解計測は一定の時間間隔で発光するパルス光を照射し、その反射光や透過光を検出することで計測するストロボスコープが一般的である。その時間分解能は観測用の照射光(Probe 光) のパルス幅やパルス間隔に依存する。本研究では sub-ps ~ 100 ps の時間変化する電子・磁化の応答を対象としており、Probe 光源にフェムト秒パルスレーザーを用いた。本研究で用いたフェムト秒パルスレーザーのパルス幅は 90 fs 程度で 1 kHz の間隔で発光するが、再現性の良い 1 kHz 未満の周期的現象に対しては、光路の長短を変えることで試料到達間隔幅を距離変化幅と光速の逆数の積で、fs オーダーとさらに高分解に計測可能である。

本研究では Probe 光だけでなく Pump 光にも超短パルス光を用いた All-Optical Pump Probe 法による計測を行った。これは、第一に AOS が sub-ps 程度のパルス幅を持つフェムト秒パルスレーザー光源によるパルス光により誘起されること、第二に本研究では光吸収後の sub-ps ~ 100 ps 程度のエネルギー散逸過程に着目しており、それよりも十分に短い時間に電子系に対し摂動的に急峻な変化を与える必要があったためである。All-Optical Pump Probe 法によって計測される透過率、反射率や偏光特性の変化は、光励起によって生じる電子や原子の状態変化を反映したものである。スペクトル形状や強度の時間発展から、電子間相互作用、電子-格子相互作用の非平衡過程を経て起こるさまざまな時間依存性を観測できる。

たとえば、この All-Optical Pump Probe 法を用いて sub-ps 程度で光化学反応の経路を明らかにされている^{[57]-[59]}。化学反応は分子内の電子による原子と原

子の化学結合の切断や再結合によって起きるため、基本的に原子の移動を除き分子という小さな系の単位でほとんどの相互作用が閉じている。

対して多数の電子と原子から構成されている固体は、原子の移動は小さいものの、電子・スピン・格子などの各系内・各系間に働く相互作用が物質全体で結合した大きな系を持つ^{[60]-[63]}。そのため、これら重畳して結合している各系の相互作用を実時間計測で分解し、その非局所な非平衡散逸過程を検討することが重要となる。金属においても光吸収後の熱散逸過程は熱拡散方程式に従う。ただし、ps 以下の光照射においては電子系の励起と格子系の励起が乖離し、局所的に異なる温度、すなわち電子温度と格子温度の二温度で非平衡に散逸するというモデル^{[60]-[62]}で説明される。

本研究の All-Optical Pump Probe 法によって計測される透過率、反射率や偏光特性の変化は、前述の通り光励起によって生じる電子や原子の状態変化を反映したものであり、全透過光や反射光に比例する光強度 I は、物質の誘電率または伝導率の時間発展に対応し、電子温度の変化としてあらわされる電子系の応答を示す。

磁気光学効果においても同様で、磁化による旋光角を反映する検出器の出力の差 Δ_{sig} は、磁化の時間発展応答を示す^{[30][63][64]}。磁気・光学効果にもとづく差分検出法によるスペクトル形状の変化やその時間発展から電子の非平衡分布や、励起状態における磁化の時間分解応答には、大きく分けて 2 種類ある。角運動量保存則にもとづく sub-ns~数 10 ps のオーダーの磁化歳差運動^{[65]-[67]}と、その歳差運動限界(FMR: 数 GHz~数 10 GHz オーダー)よりも十分小さい数 ps オーダーでの超短時間減磁である^{[63][68]}。本時間領域を計測するためには ps よりも短いパルスが必要となる^{[60][64][68]}。

そこで我々はパルス幅約 90 fs(半値全幅)のモード同期式 Ti: Sapphire(Ti

doped Al₂O₃)パルスレーザーをシステムの光源に用いた。本システムでは Pump 光と Probe 光の試料表面への到達遅延時間を光路差の機械制御により変えることで、遅延時間ごとの磁気光学応答を Probe 光により繰り返し計測する。

今回用いた All-Optical Pump Probe 計測システム^[64]を図 2-5 に示す。

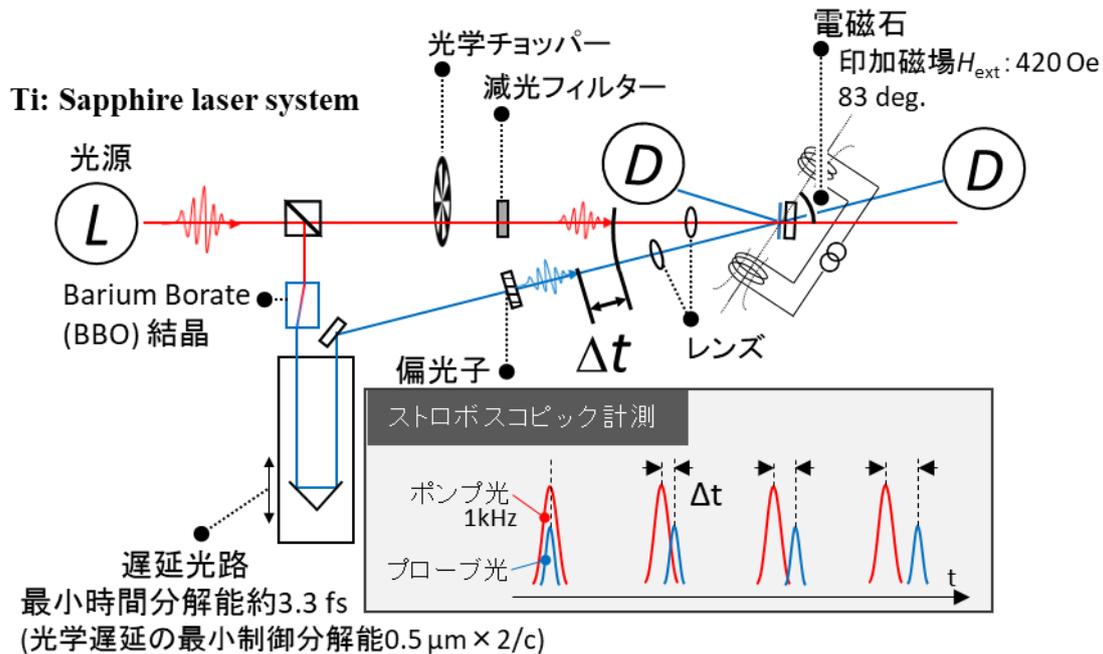


図 2-5 All-Optical Pump Probe 法による時間分解磁気光学応答計測システム

Spectra Physics 社製 Mai-Tai 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 光再生増幅器を光源として用いた。モード同期式ではレーザー共振器中にて、光軸方向(光の伝搬方向)に対して多数の電磁波モード(縦モード)の電場 $E_n(t) = E_0 \exp(i(\omega + n\pi/L)t)$ (n は正の整数)を足し合わせることで、光強度が急峻になり ($I = EE^* = E_0^2 \{ \sin^2(N\pi ct/2L) / (\pi ct/2L) \}$) 超短パルスを生成可能である。 L は共振器長である。光源の中心波長は 800 nm (半値全幅 約 14.5 nm の Gaussian 分布: (Ocean

Optics 社製 USB2000)により確認), パルス幅は 90fs(半値全幅, 自己相関機(Newport 社製 PSCOUT LR)により $A(\tau) = \int_{-\infty}^{\tau} I(t)I(t-\tau)dt = 128$ fsから確認)、繰り返し周波数は歳差運動周波数や熱緩和時定数より充分長い 1kHz (1ms)である。出射後のパルス光はビームスプリッタにより Pump 光路と Probe 光路に分離する。分離後の Pump 光路に Newport 社製 M-ILS250PP 直進ステージ上にリトロリレクターを設置し光学時間遅延用光路を設置した。光学遅延の最小制御分解能 $0.5\mu\text{m} \times 2(\text{往復})/c$ により、最小時間分解能約 3.3 fs で Pump 光と Probe 光の測定試料表面への到達遅延時間を制御可能である。Probe 光にはフェムト秒パルス光源においても位相整合により十分に第二次高調波発生(Second Harmonic Generation: SHG)可能な負の一軸性結晶 β -BaBO(BBO 結晶)を用いて中心波長 400nm に変換する^{[69][70]}。

上述のように、本計測システムは Probe 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、Probe 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 Probe 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。光源のパルスレーザーは TEM₀₀ モードであり、十分な強度範囲において空間的・時間的に Gaussian 分布として取り扱える。そのため、Probe 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、Probe 光に対し Pump 光のスポットサイズを十分大きく取り、Probe 光の強度勾配が小さい範囲での測定を行う必要がある。

本研究の検討で用いた計測システムは、Wollaston Prism によって P 偏光と S 偏光に分離させ、フォトダイオードによる差動ダイオード検出を行った。これにより磁気光学効果 $\Delta\theta(t)$ の時間分解計測が可能になる。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 とすると $2I\sqrt{\theta^2 + \eta^2}$ 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。この時時間変化に対する強度変化 $I(t)/I_0$ (透過率変化率、反射率変化率) は誘電率の対角項の変化を意味し、波長に対応する電子の吸収散逸過渡応答と対応する。特に局在した電子系では温度差分スペクトルと極めてよく一致する。

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。Pump 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、Probe 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、Probe 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 Pump 光照射の有無による差をロックインアンプにより感度高く検出することが可能となる。この計測により、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 % 以下の計測を可能としている。

2-6 磁気光学観察撮像と磁区パターン形状特徴の評価法

本節では、AOS の誘起とその形成磁区の観察・評価方法について述べる。前章の通り十分なエネルギー密度を有した超短パルス光を RE-TM フェリ磁性薄膜に照射することで外部磁場を印加せずに反転磁区を形成可能である。一様に磁化した後に形成した磁区を磁気光学効果によりイメージングし、その反転磁区の大きさを見積もることで照射エネルギーに対する AOS の誘起について検討を行う。本研究では、用いた(2-5)節の All-Optical Pump Probe 法では Pump 光

照射による一つの励起現象に対し、Probe 光による一回の測定を行い、その照射時間間隔を変え繰り返し計測を行うことで全体の時間分解計測を行う。そこで各測定における磁化状態の初期化を目的として磁場を印加しており、通常磁場を印加せずに AOS の磁化反転プロセスの時分解計測を行うことは困難である。対して、外部から磁場を印加せずに単パルス照射により AOS を誘起し、その磁区パターンを観察することで磁場駆動により磁化がうけるトルクを減ずることができ、各励起光量ごとに観察することで AOS に関わる光エネルギーとその後のエネルギー散逸過程を検討することができる。ただし、観察評価方法は励起条件と最終的な磁区パターンの観察のみで行うため、時間発展する過程を検討するためには必要に応じて(2-5) 節の All-Optical Pump Probe 法との併用で本過程を検討する必要がある。AOS の励起および磁区パターン形状評価のために構築した計測システムを図 2-6 に示す。

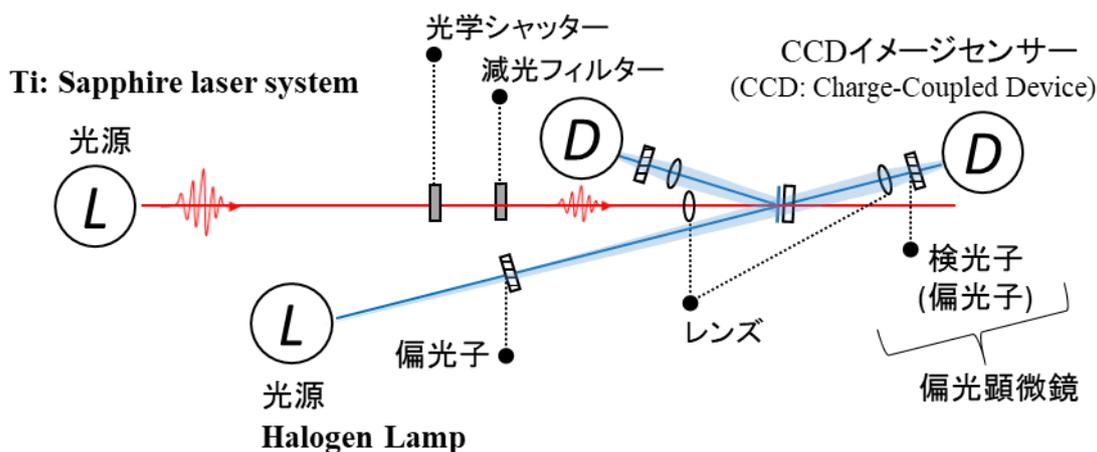


図 2-6 全光型磁化反転(AOS)励起・形成磁区評価システム

励起には All-Optical Pump Probe 法で用いた光源と同様 Spectra Physics 社製 Mai-Tai, Spitfire Pro を用いた。光源から出射した単一のパルス光を十分な強度で試料に照射すると全光型磁化反転が誘起される。これにより形成された反転磁区を、直交偏光子法(Cross Nicol 法)を用いた偏光顕微観察で行う。本検討では、観察光源にハロゲンランプを、単眼検出器として THORLAB 製 CCD カメラ DCC1240M を用いた。直交偏光子法は最も単純な磁気旋光角の測定方法で、偏光子角 θ_P と検光子角 θ_A 、磁性試料もしくは磁界印加による旋光角 θ_M で表される単眼検出器の出力強度 $I = I_0 \cos^2(\theta_M + \theta_P - \theta_A)$ の直交条件 $I = 0$ からのずれにより検出する。試料を透過するときには、前述した磁気光学 Faraday 効果により、試料磁化状態に対応して偏光角の回転が誘起される。本研究に用いた試料は垂直磁化した GdFeCo フェリ磁性体であるため、膜面上向きの磁化と下向きの磁化により、偏光方向がそれぞれ変化した光となって試料を通過することとなる。その後検光子により、再度直線偏光となるが、下向き磁化となっている領域を透過した光と上向き磁化となっている領域を透過してきた磁化では偏光方向が異なるため、結果 CCD カメラ受光面では光量に差異ができ、この差異を色の濃淡として検出する。本システムの特徴としては、超短パルス光照射部と磁区構造観察部が独立している点であり、このため磁化現象の誘起と磁化構造観察を同時に行うことが可能である。

この計測系において GdFeCo 薄膜上に観察できる光励起により形成される磁区は主に 2 種類ある。一つは AOS による完全反転磁区であり、もう一つは熱磁気的なプロセスを経て誘起される磁区である。これを熱磁気的核磁区形成 (Thermo-Magnetic Nucleation: TMN) と呼ぶ。図 2-7 に示すように高強度の超短パルス光を単パルス照射した際、初期磁化に対し反転した磁区と多磁区が形成される。

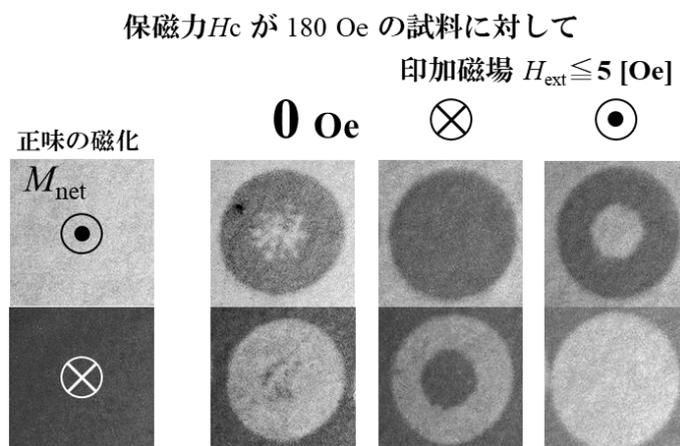


図 2-7 各印加磁場下の高強度な超短パルス光単一照射による形成磁区観察の例

前者は再度照射した際、ふたたび反転する AOS の磁区である。後者は常に多磁区を形成し、保磁力よりも低い磁場を印加した際も AOS と異なり磁場印加方向に一樣に磁化する TMN による形成磁区である。いずれの磁区も再度保磁力以上の磁場を印加すると、その磁場方向に一樣に磁化する。TMN は AOS 同様具体的な検証は未知な点もあるが、基本的には熱磁氣的磁区形成過程によって説明可能であると考えられる。これは、TMN が Gaussian レーザー強度分布の高強度領域で誘起され、同じく RE-TM 系アモルファス合金磁性薄膜で ns 程度のパルスレーザーで多磁区を形成する熱磁気記録の知見^{[71]・[73]}と良い類似を見るためである。元来 RE-TM フェリ磁性薄膜に対する記録方式としてレーザー加熱と磁場印加により磁区を形成しており、この磁区形成過程の計算機検討においても数 10 ns の時間領域において多磁区形成を経て磁気記録を行っていることが確認できる^{[72][73]}。また、フェロ磁性体においてもフェムト秒レーザーパルスの照射のみにより多磁区形成が誘起されることが確認されている^{[74][75]}。これらの磁区形成過程では熱的に励起される過程での磁区の核形成確率が重要となっており、TMN がこの熱磁氣的な核形成に起源をもつ磁区形成であると示唆される。

フェリ磁性体の熱磁気的な磁区形成における磁区安定性については、安定磁区について一軸磁気異方性 K_u と交換係数 A から成立する磁壁エネルギー σ_w を用いて評価され、特に形成可能な最小磁区半径（臨界半径） $R_c = \sigma_w / (2MH_c)$ で、 $1 \mu\text{m}$ 程度である^{[45][76][77]}。また、レーザー加熱を用いた熱磁気記録における磁壁移動は、磁性膜厚 z 、外部バイアス磁場 H_a で表記される $4\pi RzH_a|M(R)|$ により表現される^[77]。本研究での対象試料の磁化 M は極めて小さく、特に磁化補償点では 0 となる。ただし、光照射を伴った磁区形成においてそのエネルギー緩和に伴い形成磁区が周囲の正味の磁化 M_{net} の形成する磁界により変形することが既に同様な試料において検討されている^[78]。この光照射後の熱緩和過程では概ね励起から約 $1 \sim 2 \text{ ns}$ 程度比較的大きな熱勾配を生じ、約 10 ns 経過後ほぼ励起前の状態に回復するものと考えられる^{[64][79][80]}。同マグネトロンスパッタ装置で作製した 20 nm 厚の GdFeCo 薄膜に、より高強度 (12 mJ/cm^2) にて励起した場合の Xray-Magnetic Circular Dichroism の Photoemission Electron Microscope 観察 (XMCD-PEEM) による超短パルス光入射後の偏光顕微時分解撮像結果においても確認できる^[80]。しかし、この熱緩和過程に従属する磁壁移動は等速度 v_{wall} として磁化補償点近傍で観察される最高速度約 200 m/s ^{[76][81]} で、 10 ns 間移動したと仮定しても $2 \mu\text{m}$ 程度となり、数十~数百 μm の磁区を観察する本観察での寄与は想定される最大値としても 10% 未満である。

2-7 本章のまとめ

本章では電子軌道・磁気的に複雑な混合した系を持つ希土類(RE)–遷移金属(TM)フェリ磁性アモルファス合金薄膜の基礎的な磁気的起源と Magnetron Sputtering による薄膜試料作製(2-2)について述べ、本論で実施した(2-3) Vibrating Sample Magnetometer による磁化と保磁力の評価、(2-4) 磁気光学

2-8 参考文献

効果による副格子磁化特性評価による副格子磁化計測について記した。また、(2-4) の手法を用いて構築した(2-5)All-Optical Pump Probe 法による時間分解磁気・光学応答計測と(2-6) 磁気光学観察撮像と磁区パターン形状特徴の評価法、そして磁区形成過程の検討について述べた。これら試料作製と計測・評価法は本論文での検討を実験的に進める上で、十分に満たす精度を有している。

2-8 参考文献

- [1] L. Néel, *Annales de Physique*, 3, 137–198 (1948)
- [2] H. N. Russel, F. A. Saunders, *Astrophys. J.* 61, 38 (1925)
- [3] F. Hund, “*Linien spektren und periodisches System der Elemente*”, Julius Springer, Berlin (1927)
- [4] A. Landé, *Z. Physik*, 15, 189 (1923)
- [5] J. H. Van Vleck, “*Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities*”, Clarendon Press, Oxford, 244 (1932)
- [6] C. Slater, *J. Appl. Phys.* 8, 385 (1937)
- [7] E. C. Stoner., *Phil. Mag.*, 25, 899 (1938)
- [8] R. E. Watson and A. J. Freeman, *Phys. Rev.*, 123, 2027 (1961)
- [9] J. H. Wood, *Phys. Rev.*, 126, 7 (1962)
- [10] S. Wakoh, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 28, 5 (1970)
- [11] J. O. Dimmock, A. J. Freeman, *Phys. Rev.*, 13, 750 (1964)
- [12] 田中宏志, 高山新司, 藤原毅夫, *日本応用磁気学会誌 (J. Mag. Soc. Jpn.)*, 15, 2 (1991)
- [13] H. Tanaka, S. Takayama, *J. Appl. Phys.*, 70, 6577 (1991)
- [14] K. Moorjani, J. M. D. Coey, *Magnetic Glasses*, Elsevier, 15 (1984)

- [15] R. C. Taylor, T. R. McGuire, J. M. D. Coey, A. Gangulee, *J. Appl. Phys.*, 49, 2885 (1978)
- [16] J. M. D. Coey, *J. Appl. Phys.*, 49, 1659 (1978)
- [17] 佐藤勝昭, 深道和明, 五味学, 片山利一, 阿部正紀, 光磁気ディスク材料—基礎および次世代への展望, 工業調査会 (1993)
- [18] S. Klahn, H. Bentin, B. Knörr, and H. Heitmann, *Journal of Applied Physics*, 67, 1442 (1990)
- [19] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.*, 99, 047601 (2007)
- [20] 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, A.V. Kimel, *Nature Commun.*, 3, 666 (2012)
- [21] P. Chaudhari, J.J. Cuomo, R.J. Gambino, *Appl. Phys. Lett.*, 22, 337 (1973)
- [22] H. Awano, S. Ohnuki, H. Shirai, N. Ohta, A. Yamaguchi, S.Sumi, K. Torazawa, *Appl. Phys. Lett.*, 69, 27, 4257 (1996)
- [23] 桜井 良文, 応用物理, 43, 7, 727-734 (1974)
- [24] P. Chaudhari, J. J. Cuomo, R. J. Gambino, *IBM Journal of Research and Development*, 17, 1 (1973)
- [25] N. Funakoshi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 14, 565 (1975)
- [26] N. Kazama, N. Heiman, R. L. White, *J. Appl. Phys.*, 49, 1706 (1978)
- [27] H. C. Bourne Jr., R. B. Goldfarb, W. L. Wilson Jr., R. Zwingman, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-11, 1332 (1975)

- [28] T. Katayama, Y. Koizumi, M. Hirano, T. Tsunashima, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 42, 1057 (1977)
- [29] K. Vahaplar, A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, D. Hinzke, U. Nowak, R. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.*, 103, 117201 (2009)
- [30] 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, A. V. Kimel, *Nature*, 472, 205 (2011)
- [31] C. E. Graves, A. H. Reid T. Wang, B. Wu S. de Jong, K. Vahaplar, I. Radu, D. P. Bernstein, M. Messerschmidt, L. Müller, R. Coffee, M. Bionta, S. W. Epp, R. Hartmann, N. Kimmel, G. Hauser A. Hartmann, P. Holl, H. Gorke, J. H. Mentink, A. Tsukamoto, A. Fognini, J. J. Turner, W. F. Schlotter, D. Rolles, H. Soltau, L. Strüder, Y. Acremann, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, Th. Rasing, J. Stöhr, A. O. Scherz, H. A. Dürr, *Nature Materials* 12, 293–298 (2013)
- [32] T. J. Huisman, R. V. Mikhaylovskiy, A. Tsukamoto, Th. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. B*, 92, 104419 (2015)
- [33] D. O. Smith, *Rev. Sci. Instrum.*, 27, 261 (1956)
- [34] S. Foner, *Rev. Sci. Instrum.*, 30, 7, 548–557 (1959)
- [35] B.D. Josephson, *Physics Letters*, 1, 7, 251-253 (1962)
- [36] QuantumDesign Inc., “Magnetic Property Measurement System SQUID VSM User’s Manual”, 1500-100, C0 (2009)
- [37] J. E. Opfer, Y. K. Yeo, J. M. Pierce, L. H. Rorden, *IEEE Transactions on Magnetics*, 10, 3, 536–539 (1974)

- [38] C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, , Phys. Rev. B, 73, 220402(R) (2006)
- [39] 家田淳一, 日本物理学会講演概要集, 69, 2-4, 650 (2014)
- [40] 山本寛, 表面技術, 41, 8, 803-807 (1990)
- [41] 二川康宏, 吉川大貴, 笠谷雄一, 田中万裕, S. El Moussaoui, 塚本新, 電学マグネティックス研資, MAG-17-150, 57-62 (2017)
- [42] M. Faraday, Faraday's Diary, IV, Nov. 12, 1839 - June 26, 1847 (1933)
- [43] J. Kerr, Philosophical Magazine, 3, 321 (1877)
- [44] H. S. Bennett, E. A. Stern, Phys. Rev., 137, A448 (1965)
- [45] 佐藤勝昭, 現代人の物理「光と磁気」改訂版 第4刷, 朝倉書店 (2007)]
- [46] S. Tsunashima, S. Masui, T. Kobayashi, S. Uchiyama, J. Appl. Phys., 53, 8175 (1982)
- [47] Y. J. Choe, S. Tsunashima, T. Katayama, S. Uchiyama, 日本応用磁気学会誌 (J. Mag. Soc. Jpn.), 11, S1_273-276 (1987)
- [48] J. S. Toll, Phys. Rev., 104, 1760 (1956)
- [49] P. Drude, Annalen der Physik, 306, 3, 566-613 (1900)
- [50] P. Drude, Annalen der Physik, 308, 11, 369-402 (1900)
- [51] E. Fermi, Rendiconti Lincei, 3, 145-9 (1926)
- [52] L. D. Landau, J. Exptl. Theoret. Phys., 30, 1058-1064 (1956)
- [53] R. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn., 12, 570, (1957)
- [54] C. S. Wang, J. Callaway, Phys. Rev. B, 9, 4897 (1974)
- [55] J. L. Erskine, E. A. Stern, Phys. Rev. Lett., 30, 1329 (1973)
- [56] J. L. Erskine, E. A. Stern, Phys. Rev. B, 8, 1239 (1973)
- [57] A. H. Zewail, Laser femtochemistry. Science, 242, 1645–1653 (1988)

- [58] K. H. Kim, J. G. Kim, S. Nozawa, T. Sato, K. Y. Oang, T. W. Kim, H. Ki, J. Jo, S. Park, C. Song, T. Sato, K. Ogawa, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, J. Kim, R. Ryoo, J. Kim, H. Ihee, S. Adachi, *Nature*, 518, 385–389 (2015)
- [59] S. Iwai, K. Yamamoto, A. A. Kowalska, K. Yakushi, *Appl. Phys. Lett.*, 96, 122901 (2010)
- [60] S. I. Anisimov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 58, 337-340 (1970)
- [61] F. V. Bunkin, A. E. Kazakov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 59, 2233-2243 (1970)
- [62] M.I. Kaganov, I.M. Lifshitz, L.V. Tanatarov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 31, 2, 232, (1957)
- [63] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.*, 76, 4250 (1996)
- [64] T. Sato, S. Toriumi, A. Tsukamoto, A. Itoh, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 36, 82 (2012)
- [65] L. D.Landau, E. M. Lifshitz, *Physik. Zeits. Sowjetunion*, 8, 153-169 (1935)
- [66] J. Kaplan, C. Kittel, *The Journal of Chemical Physics*, 21, 760 (1953)
- [67] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A.V. Kimel, A. Tsukamoto, A.Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, *Phys. Rev. B*, 73,220402(R) , 1-4 (2006)
- [68] 塚本新, 伊藤彰義, *J. Res. Inst. Sci. Tech., Nihon Univ. No. 122 pp. 25-33* (2010)
- [69] C. Chen, B. Wu, A. Jiang, G.You, *Sci. Ser. B*, 28, 235 (1985)
- [70] D. N. Nikogosyan, *Appl. Phys. A*, 52, 359-368 (1991)
- [71] R. Giles, M. Mansuripur, *日本応用磁気学会誌*, 15, S1_299-306 (1991)

- [72] M. Mansuripur, *J. Appl. Phys.*, 61, 1580 (1987)
- [73] T. Satoh, Y. Takatsuka, Y. Yoneyama, T. Yoroazu, *IEEE Trans. Magn.*, 26, 5, (1990)
- [74] Y. K. Takahashi, R. Medapalli, S. Kasai, J. Wang, K. Ishioka, S. H. Wee, O. Hellwig, K. Hono, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. Applied*, 6, 054004 (2016)
- [75] Zhidong Du, Chen Chen, Feng Cheng, Yongmin Liu, Liang Pan, *Sci. Rep.*, 7, 13513 (2017)
- [76] T. Kobayashi, H. Tsuji, S. Tsunashima and S. Uchiyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 20, 2089 (1981)
- [77] B. G. Huth, *IBM Journal of Research and Development*, 18, 2, 100 - 109 (1974)
- [78] A. Itoh, M. Tanaka, M. Akiyama, T. Ishikawa, T. Seida, K. Nakagawa, 日本応用磁気学会誌 (*J. Mag. Soc. Jpn.*), 25, 3_2, 379-382 (2001)
- [79] N. Kazantseva, U. Nowak, R. W. Chantrell, J. Hohlfield, A. Rebei, *EPL*, 81, 27004 (2008)
- [80] T. Ohkochi, H. Fujiwara, M. Kotsugi, A. Tsukamoto, K. Arai, S. Isogami, A. Sekiyama, J. Yamaguchi, K. Fukushima, R. Adam, C. M. Schneider, T. Nakamura, K. Kodama, M. Tsunoda, T. Kinoshita and S. Suga: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 51, 073001 (2012)
- [81] T. Tono, T. Taniguchi, Kab-Jin Kim, T. Moriyama, A. Tsukamoto, T. Ono, *Appl. Phys. Exp.*, 8, 073001 (2015)

第3章 フェリ磁性体の磁化補償点近傍における全光型磁化反転

3-1 フェリ磁性体の副格子磁化構造と磁化反転原理現象

本章では AOS が従来の磁場駆動型の磁化反転と異なる反転原理を起源を持つことを示すために、希土類(RE)-遷移金属(TM)フェリ磁性体の磁気特性が大きく変わる磁化補償点近傍において、全光型磁化反転(AOS) が組成・温度に対してどのような依存性を持つか検討する。

AOS は元素識別時間分解 Pump Probe 計測により ps 程度で反転が計測、確認^[1]され、以下のことが明らかにされている。① \sim ps の時間領域で各副格子磁化が異なる時定数で反転していき^[1]、② この反転過程が副格子磁化間での角運動量遷移により生じうるモデルで説明可能であることが理論検討により示唆された^[2]。③ また、 \sim ps の時間領域で空間的にも副格子間の角運動量遷移が生じていることが元素識別時分解磁気散乱計測により明らかにされている^[3]。ただし、①、③はいずれも時間分解計測のために、磁化の初期化を目的とした外部磁場印加の下で検討されており、正味の磁化 \mathbf{M} を有することによる“自己減磁界”“漏洩磁界”そして“外部磁場”などの実効磁場 \mathbf{H}_{eff} の寄与を介して AOS が誘起される磁場駆動型磁化反転原理による可能性を残している。

従来磁化反転では正味の磁化 \mathbf{M} が印加磁場 \mathbf{H}_{ext} の形成するポテンシャル ($-\mu_0 \int \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{ext}} dV$) の勾配により駆動される^[4]。また、磁場駆動による対象系の正味の磁化が実効的磁場 \mathbf{H}_{eff} から受ける $\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}$ のトルクによって歳差運動を伴いながら反転する。この運動方程式は一般的なダンピングまで含め、下式のように Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式^{[5][6]}として一般的な磁化の運動方程式として

表現される。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M}\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad (3-1)$$

すなわち、この磁場駆動型の磁化反転の誘起を困難にするためには正味の磁化 \mathbf{M} や実効磁場 \mathbf{H}_{eff} もしくはその両方を極めて小さくする必要がある。フェリ磁性体においては正味の磁化 \mathbf{M} が0となる状態が二つある。一つは磁化補償点であり、もう一つはCurie点である。たとえば磁化補償点近傍においては(2-1)節で記したように \mathbf{M} が0を含み大きく変化する。 \mathbf{M} が0となる磁化補償状態では反強磁性状態であり、磁場による磁化反転は困難となり、この近傍で磁化反転の難易は大きく変化する。

これに対して、AOSは副格子磁化に根差した異なる反転原理を有すると考えられている^{[1][2][7]}。(2-1)節で述べたように、磁化補償点近傍では正味の磁化は0を含み大きく変わるが、副格子磁化はほぼ変わらずおおむね線形に変化する。したがって、AOSは磁化補償点近傍においてもほぼ一様に誘起されると予想される。すなわち、磁化補償点近傍においてAOSの形成磁区を観察することで、AOSが主として元素由来のRE, TMの各副格子磁化に由来する新奇な磁化反転であるか、従来型の磁場駆動型磁化反転と同様に正味の磁化に由来するかの弁別が可能となる。

3-2 作製試料群：組成の異なるGd-FeCo試料群

GdFeCoの正味の磁化 \mathbf{M} が0になるような磁化補償近傍における検討を行うため、磁気光学効果増強および熱蓄積抑制のために光磁気ディスクの設計手法^[9]にもとづいて、室温において磁化補償状態を発現する組成比を含む前後の組成比のGd-FeCo試料群を作製した。既存の報告^{[8]-[12]}から $\text{Gd}_x(\text{FeCo})_{1-x}$ の組成比 x を $x \approx 0.2 \sim 0.4 \text{ at. \%}$ とした場合に磁化補償点が室温近傍、かつ室温にお

3-2 作製試料群：組成の異なる Gd-FeCo 試料群

いて垂直磁化となる特性が得られる。このような垂直磁気異方性を有する RE-TM フェリ磁性体の組成比(合金比)依存性 $RE_x(Fe_yCo_{1-y})_{1-x}$ は、光磁気・磁気バブルメモリの開発を念頭に磁気光学計測と併せて検討されてきた^{[9][12]}。本検討では光磁気ディスクの設計に習い、純粋に RE-TM 合金の電子状態を保持したまま熱的緩和過程の冷却効率を加速するため SiN 誘電体層を介して比熱の大きな AlTi 層を挿入し、試料群を設計した。2 章で記したマグネトロンスパッタ法により試料群 SiN (60 nm) / $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$ (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub. ($x = 22 \sim 26$ at. %) を作製した(図 3-1)。

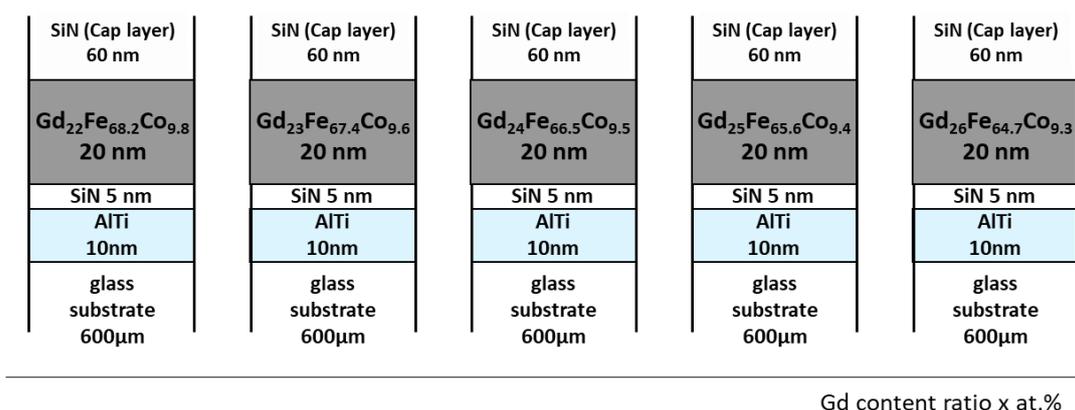


図 3-1 Gd 組成比 x の異なる $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$ 試料群

フェリ磁性合金はその磁化の温度特性に特徴を持つ (図 3-2, 次節(3-3))。また、磁化補償温度 T_{comp} は合金の組成比 $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$ に対し連続的に変化する。これは前述の通り RE と TM の副格子磁化が反平行に結合しており、その温度特性はそれぞれの副格子磁化の温度特性の重ね合わせで現れるためである。RE, TM の温度特性はそれぞれ Langevin 関数的に 0K から Curie 温度 T_c に向かって減じていく。RE-TM 系の磁化は図 3-2 のように副格子磁化の差 $|M_{RE}(T) - M_{TM}(T)|$ で表される。

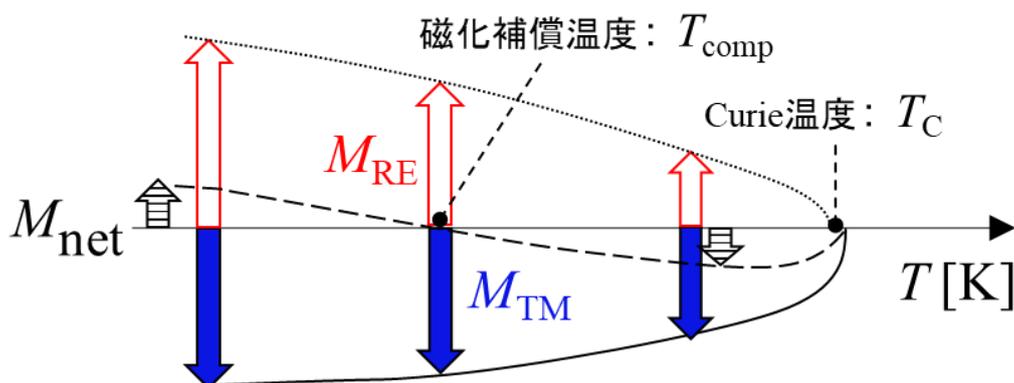


図 3-2 フェリ磁性合金の磁化の温度特性とモデル

Curie 点よりも低温で $|M_{RE}(T) - M_{TM}(T)| = 0$ となるところが磁化補償点である。この磁化補償点は、ある試料に対しての温度依存性から導かれる場合は磁化補償温度 T_{comp} と呼ばれ、一定の背景温度における組成比依存性を検討した場合は磁化補償組成 x_{comp} と呼ばれる。既存の検討から GdFeCo 薄膜は室温において x_{comp} が $x = 24 \sim 25$ at.% の間に存在しているため、本検討ではその前後の合金組成比を含む試料を作製した。また磁化補償点近傍には、その近傍で Gilbert ダンピング定数 α が大きく変化するような角運動量補償点 $|M_{RE}(T)|/\gamma_{RE}(T) - |M_{TM}(T)|/\gamma_{TM}(T) = 0$ も存在する^{[13][14]}。磁気緩和や磁壁速度など動的な要素が大きく変化し、最終的な形成磁区により差を生むことも予想される。

3-3 磁化補償点近傍における静的磁気特性の評価

(3-2)節で作製した試料群の正味の磁化と副格子磁化の磁化特性を評価する。試料群 SiN (60 nm) / Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x} (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub. ($x = 22 \sim 26$ at. %) に対し膜面垂直方向の磁場に対する磁化特性、温度に対する残留磁化特性を評価した。図 3-3 (a)は、試料群を 70 kOe で磁化を飽和した後、残留磁化を無磁場下で 5K/min で昇温しながら量子干渉素子(MPMS3)を用いて計測した結果である。また、図 3-3 (b)は背景温度と温度変化にともなう磁化の時間

3-3 磁化補償点近傍における静的磁気特性の評価

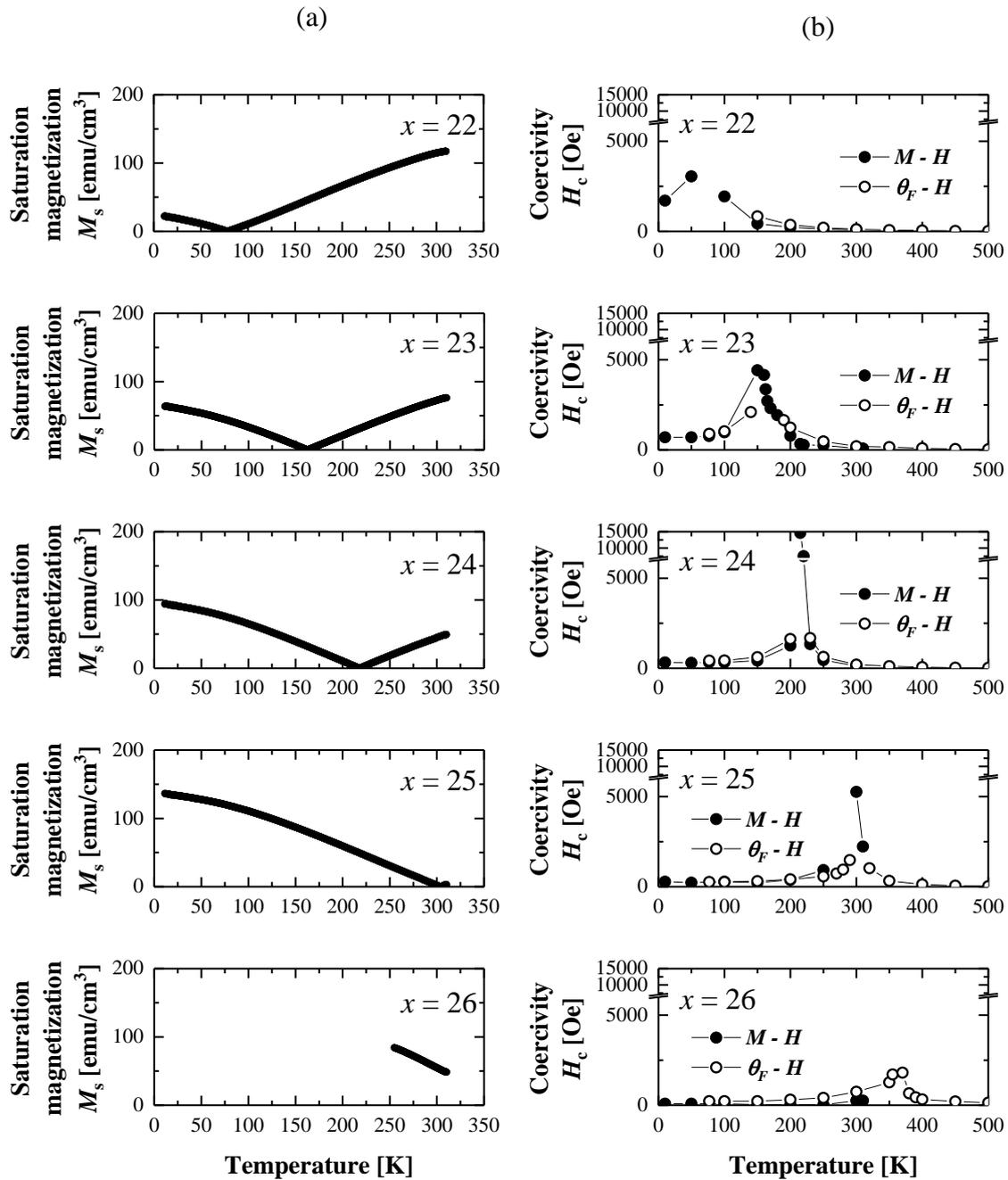


図 3-3 SiN (60 nm) / $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$ (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub. ($x = 22 \sim 26$) の各組成比に対する (a) 正味の磁化の背景温度依存性と (b) (黒点) MPMS3 を用いて計測した残留磁化の磁場依存性から見積もった保磁力 H_c の背景温度依存性と (白点) 磁場に対する Faraday 回転角の依存性から見積もった保磁力 H_c の背景温度依存性

変化が安定するような平衡温度において磁場を印加し計測した M-H 曲線または Faraday 回転角 θ_F の磁場依存性の計測から保磁力 H_c を見積もった結果である。

いずれの組成 x においても良好な垂直磁化を発現し、これまでのフェリ磁性体モデルにより得られる温度に対する正味の磁化 M_{net} の磁化曲線と非常によく一致する。各試料において $|M_{\text{RE}}(T) - M_{\text{TM}}(T)| = 0$ となるような磁化補償点を確認でき、図 3-3 (b) に示すように正味の磁化 M_{net} を計測する VSM と遷移金属合金の副格子磁化 M_{TM} を計測する波長 600 nm の光源を用いた MO 計測により観測される磁化補償点は一致する。そして、VSM により計測される M-H ヒステリシス曲線の応答は全温度域において飽和磁化を正に持つのに対して、MO 計測では回転角の磁場依存性の曲線が磁化補償点を境に位相が反転している。また、 M の減少に伴い保磁力 H_c も磁化補償点近傍で急峻に増加しており、温度や組成に依っては同一環境下で 1000 倍も異なることが確認できる。そして、既存の検討と同様 x_{comp} は 24 ~ 25 at. % に存在し、かつ $x = 25$ at. % の試料が最も x_{comp} に近い試料であることが確認できる。

磁化補償点近傍では保磁力が急峻に増大する。これは M が極めて小さく、印加磁場から十分な反転トルクが得られず、磁場駆動型の磁化反転誘起が困難となることを示す。単一磁区を作るために励起光を照射し磁区を形成する場合、その形成磁区の大きさは磁化補償点近傍で大きく変化する^{[11][12][15]}。磁化補償点近傍における試料群に対して Gaussian laser を照射した際に、各試料における磁化の温度特性に従い保磁力 H_c は膜面内でも大きく変化する。その磁区の半径方向への形状分布は、各組成比・温度に対し連続的に変化する保磁力の温度依存性から、例えば図 3-4 のような傾向を示すと予想される。

3-3 磁化補償点近傍における静的磁気特性の評価

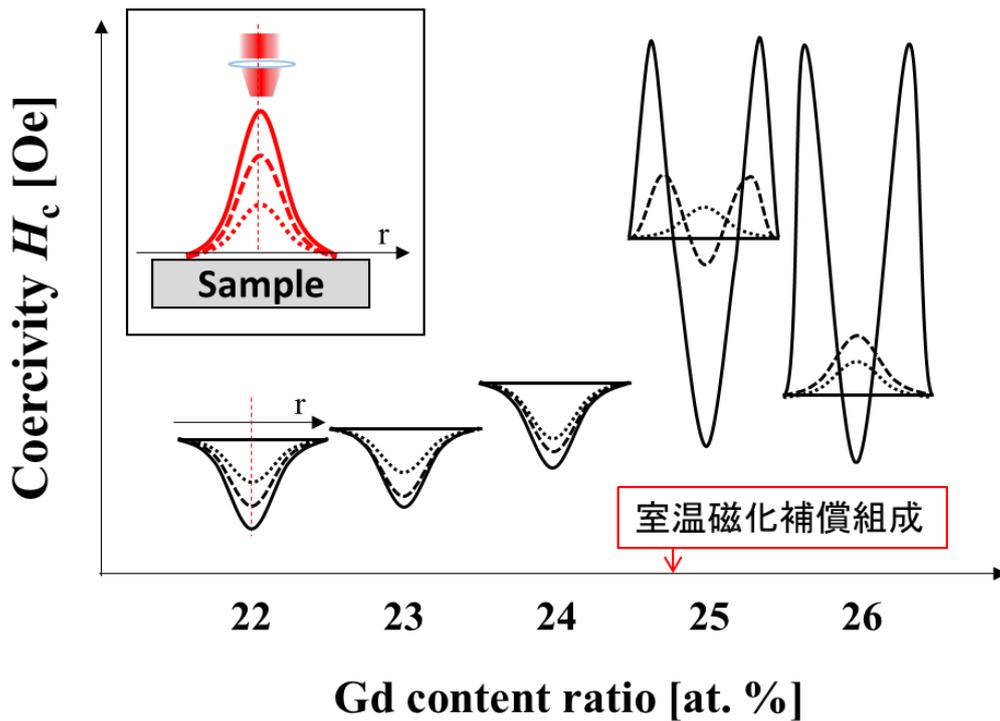


図 3-4 GdFeCo の磁化補償点近傍の保磁力の温度依存性から類推した各背景温度における Gaussian laser 加熱による保磁力の半径方向分布の例

図 3-4 から室温における磁化補償組成近傍では膜面内方向での保磁力の分布の形状や大きさが大きく異なる。すなわち、磁場駆動型の磁化反転により磁区形成を行った場合、いずれの外部磁場においても形成される磁区のサイズは大きく異なり、磁化補償点近傍かつ磁化補償組成よりも高い Gd 組成比の試料では小さな磁区が形成されることを意味する。この性質を利用した記録は補償点記録^[16]と言ひ、Curie 点記録^[17]と合わせ検討され、実用化された。また、この様なレーザー加熱による高密度記録は現在でも、Hard Disk Drive の高密度記録方式として、より高い垂直磁気異方性試料に対し熱アシスト磁気記録^{[18][19]}として実用化されている。

3-4 磁化補償組成近傍における全光型磁化反転

まず、局所的な各元素磁気モーメントがそれぞれ等量となるような一定温度(室温)において組成比の異なる試料上で AOS を誘起し、それにより形成される磁区を観察し、その形成面積を評価する。その結果を図 3-5 に示す。図 3-5 (a) は MPMS3 で計測した各 Gd 組成比 x に対する磁化 M と保磁力 H_c を示している。本組成比範囲においては $x = 24 \sim 25$ at. % に磁化補償組成 C_{comp} が存在する。そして、図 3-5 (b) では Gd 組成比 $x = 22 \sim 26$ at. % (1 at. % 毎) の試料に対し、各強

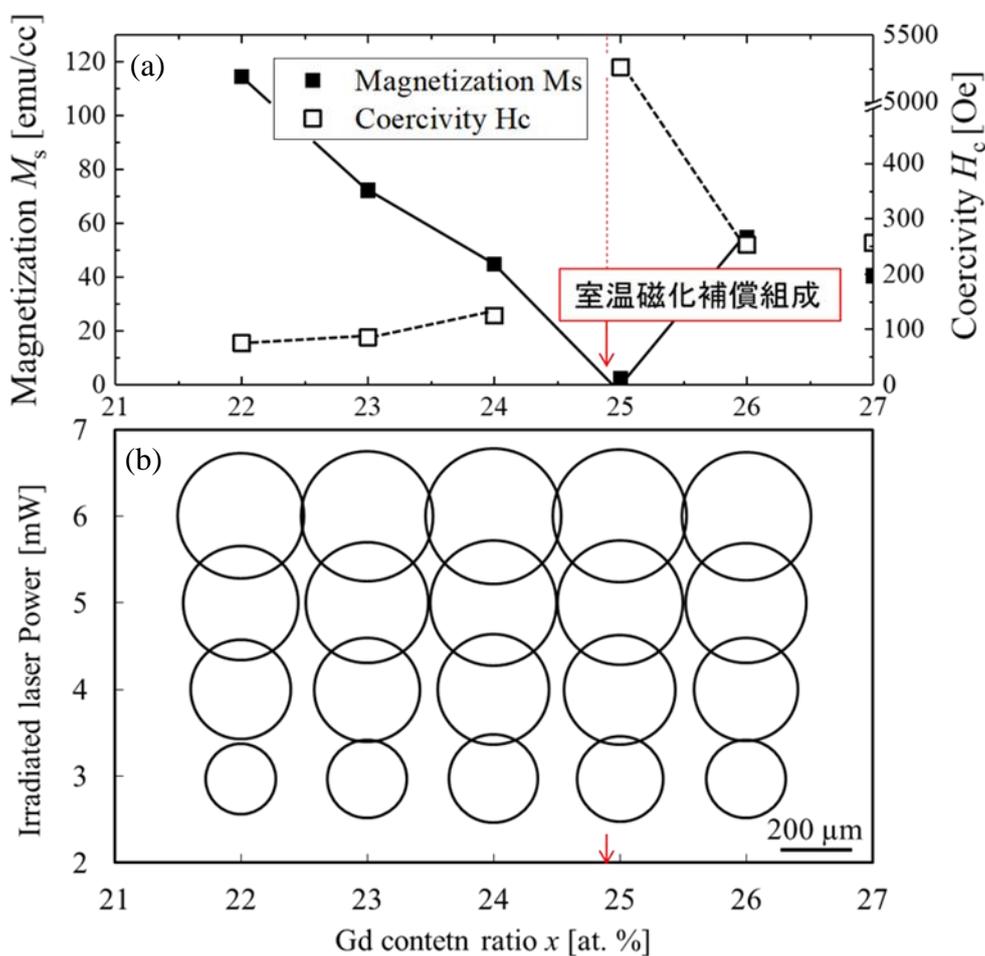


図 3-5 $\text{Gd}_x(\text{Fe}_{87.5}\text{Co}_{12.5})_{100-x}$ の AOS 形成磁区、物性値の組成依存性 (a) 各組成 (Gd 組成比 x at. %) における保磁力と磁化 (b) 各組成, 照射光強度に対する AOS 形成磁区

3-4 磁化補償組成近傍における全光型磁化反転

度の照射エネルギーに対し AOS により形成した磁区面積を示す。図 3-5 (b)における縦軸は照射したパルス光のエネルギーを示しており、横軸は Gd 組成比 $x = 22 \sim 26 \text{ at. \%}$ (1 at. \% 毎) である。そして、円の面積は各エネルギーにおける形成磁区面積を表している。

本結果より、磁化補償組成 C_{comp} 近傍のいずれの組成比の試料においても同強度の照射エネルギーに対してほぼ同程度の面積の磁区を形成することが明らかとなった。また、磁化補償点近傍に近づくに従って形成磁区面積がやや大きくなる傾向がある。これは磁場駆動型の磁化反転で想定される磁化補償点近傍で磁化反転が困難になることと一致しない。すなわち、AOS 現象は正味の磁化 M_{net} に強く依存しない特異な磁化反転現象であることが明瞭に示されたことになる。

また、AOS 形成磁区面積がいずれの Gd 組成比に対しても照射光エネルギーに対し一意に対応して形成磁区面積が増大しているように見えることから、照射光強度に強い依存性を示していることは明らかである。そこで、既存の検討と同様に AOS の照射光エネルギー密度に対する検討を行う。照射光の空間分布は Gaussian であるが、AOS により形成された磁区を照射光強度に対し積層して表示すると図 3-6 のように Gaussian と非常に類似した分布となる。

このことから AOS は照射光強度 $W_p \text{ J/m}^2$ が閾値 $W_{\text{th}} \text{ J/m}^2$ を超えた領域内において反転すると考え、以下の計算を行う。光強度分布を Gaussian と仮定したとき、その強度分布はレーザースポットに依存し、(3-2)式のようになる。

$$I(r) = \frac{2 (dE_p/dt)}{\pi \omega_0^2 \cdot \exp(2r^2/\omega_0^2)} \quad (3-2)$$

ここで、 $I(r)$ は光強度、 E_p は単パルスのエネルギー、 r はガウシアンピーク値位置からの距離、そしてスポット半径 ω_0 は強度が $1/e^2$ になる半径である。ここで円形反転磁区内の最小強度を示す反転領域臨界半径におけるエネルギー密度を W_{th} と定義する。

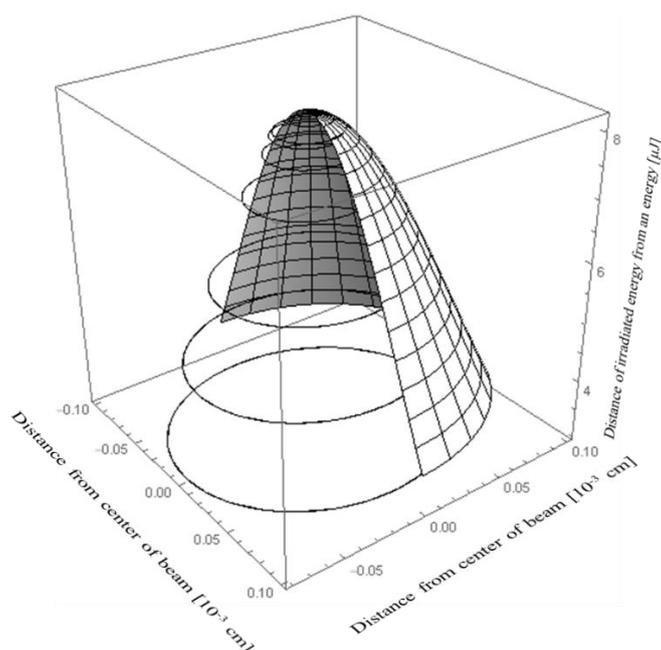


図 3-6 照射光強度に対する形成磁区面積と Gaussian 分布 ($x = 24$ at. %)

$$\begin{aligned}
 W_{\text{ft}} &= \int I(r_c) dt \\
 &= \frac{2 E_p}{\pi \omega_0^2 \cdot \exp(2r_0^2/\omega_0^2)}
 \end{aligned}
 \tag{3-3}$$

単一レーザーパルスにおいてガウシアン強度空間分布、時間方向に矩形波を仮定し、上式により照射エネルギー密度 W_{ft} を算出する。結果として $0.9 \sim 2.6 \mu\text{J}$ のレーザーパルス光エネルギー照射範囲での W_{ft} の値は、いずれの組成・照射光エネルギーから換算したエネルギー密度においても $2.5 \sim 4 \text{ mJ/cm}^2$ の範囲内である。 W_{ft} の組成依存性は高エネルギー状態に置いていずれの場合も $3.2 \pm 0.4 \text{ mJ/cm}^2$ となり、最低エネルギーである $E_p = 0.9 \mu\text{J}$ ではいずれも $W_{\text{ft}} = 2.6 \text{ mJ/cm}^2$ となった。そして、 C_{comp} を含む $x = 22 \sim 26$ at. % のいずれの組成においても AOS 磁区領域はほぼエネルギー密度閾値 W_{ft} から導かれる臨界半径で規定できる。これにより AOS が正味の磁化 M_{net} に強く依存せず、照射光エネルギー密度およびその閾値 W_{ft} に強く依存していることが明らかとなった。また、 $W_{\text{ft}} = 3.2 \pm 0.4$

3-4 磁化補償組成近傍における全光型磁化反転

mJ/cm^2 という値は、同装置により作製された試料群における AOS の励起波長依存性の検討で算出された値とも一致する^[20]。

磁化補償点近傍に近づく、すなわち M_{net} が小さくなるにつれ、やや形成磁区が大きくなることに関しては、光入射後の試料薄膜内で起こるエネルギー緩和に伴う磁壁移動 $4\pi RzH_a|M(R)|$ ^[21] を始めとした反転磁区形成後の熱磁気的現象や組成比にもとづく磁区形成過程の時間的差異^[22] によるものと示唆される。ただし、磁化補償点近傍における全光型磁化反転として統一的に検討するために、さらに次節にて同一試料上での各平衡温度における同様の検討を行う。

3-5 磁化補償温度近傍における全光型磁化反転

前節同様に、より磁化補償状態に近づけることが可能な背景温度制御により、同一試料内で各副格子磁化がそれぞれ大きく変化する様な磁化補償温度近傍において AOS を検討する。室温において極めて磁化補償状態に近い試料 $x = 24$ at. % とやや離れた $x = 22$ at. % の試料に対し $T = 76.9$ K から 350 K の範囲において同様に AOS を誘起・評価した。図 3-7 (a), (c) は VSM 計測及び、磁気光学計測により算出した各 Gd 組成比 x at. % に対する保磁力 H_c を示している。本組成比範囲においては $x = 22$ at. % の試料では $T = 76$ K 近傍に、 $x = 24$ at. % の試料では $T = 218$ K 近傍に磁化補償組成 T_{comp} が存在する。そして、図 3-7 (b), (d) では Gd 組成比 $x = 22, 24$ at. % の試料に対し、各強度の照射エネルギーに対し AOS により形成した磁区面積を示す。縦軸は照射したパルス光のエネルギーを示しており、円の面積は各エネルギーにおける形成磁区面積を表している。

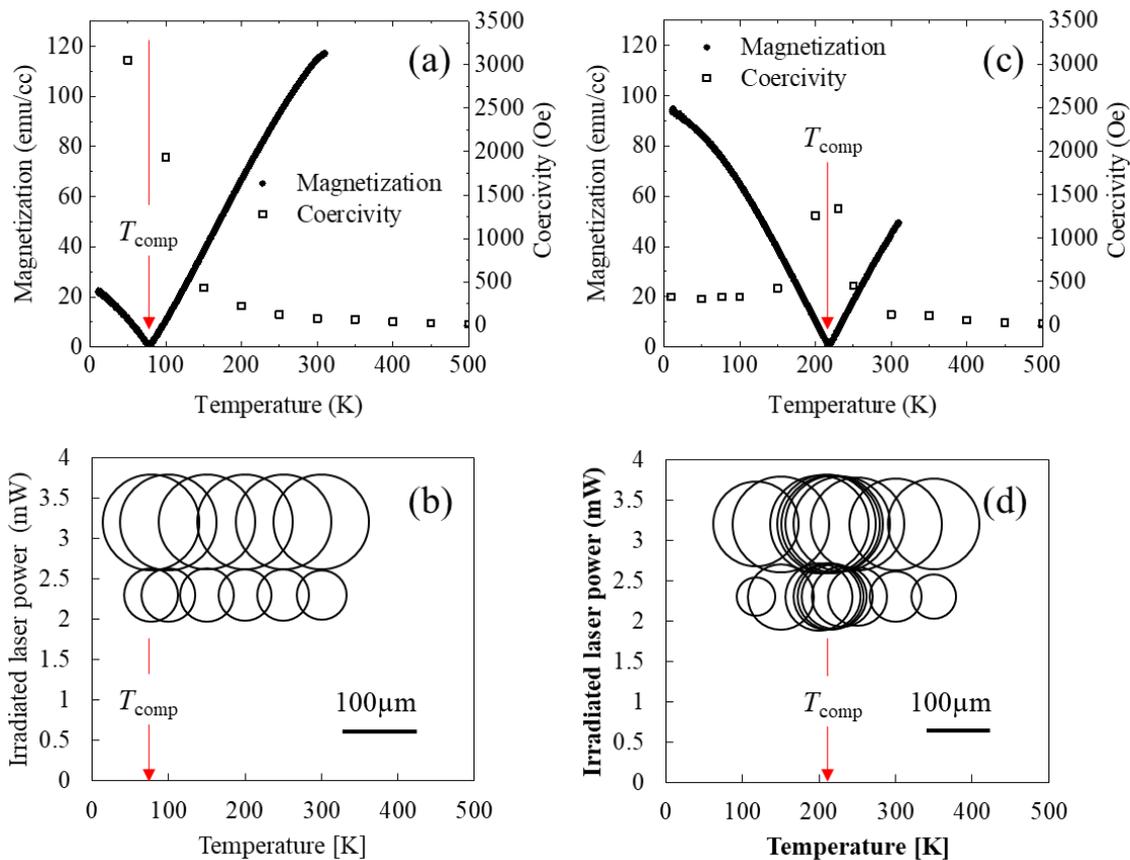


図 3-7 $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$ ($x = 22$ at. %) ($x = 24$ at. %) の AOS 形成磁区、磁化特性の温度依存性 (a), (c) 磁化および保磁力 (b), (d) 各照射光強度における AOS 形成磁区面積

本結果において、磁化補償組成近傍における AOS の形成磁区面積の検討と同様、磁化補償温度近傍においても AOS によりほぼ一様に磁区を形成できることが明らかとなった。また、本計測においても磁化補償点近傍に近づくほど形成磁区面積が増大する傾向が観察された。これは磁化補償組成近傍における AOS の形成磁区面積の検討した内容と同様である。

これにより、保磁力が急峻に変化する磁化補償点近傍においても AOS はほぼ一様に励起されると言える。また、磁場駆動型の磁化反転は照射光エネルギー密

3-6 本章のまとめ

度 W_p 、各温度により変化する試料の有する保磁力 H_c (T)、周囲の磁化により形成される反磁界を含めた印加磁場 H_{ext} に強く依存して形成されるのに対し、AOS では全く異なる反転原理を有し、磁場や正味の磁化に強く依存せず、照射光エネルギー密度に対する閾値現象であることを明らかにした。また、磁場駆動型の磁化反転が困難となるような磁化補償点近傍においても磁化反転できる AOS は、補償点記録と同様情報保持の極めて高い情報記録手段であると言える。

3-6 本章のまとめ

本章では、希土類(RE)-遷移金属(TM)合金のフェリ磁性体という電子的・磁気的に複合した系における全光型磁化反転(AOS)の駆動対象となる磁化の弁別を図るために、試料内の正味の磁化 M_{net} が大きく変化するような磁化補償点近傍の AOS の磁区形成について検討を行った。

まず、室温において磁化補償点近傍となるような試料群：(SiN (60 nm) / $Gd_x(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x}$ (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub. ($x = 22 \sim 26$ at. % (1 at. % 毎))) を作製し、その静的磁気特性について量子干渉素子を用いた正味の磁化計測、磁気光学効果を用いた副格子磁化特性評価により確認を行った。次に、各背景温度において同一条件下で各試料群に対し、十分な強度の超短パルス光を照射し AOS により磁区形成を行い、その形成磁区面積について磁気光学効果を用いた偏光顕微観察により測定した。磁化補償点近傍においては、熱磁気記録でも用いられるような磁場駆動による磁区形成は困難となり、形成磁区面積は急峻に変化するが、AOS により形成される磁区面積は同一の照射光エネルギーに対し、いずれの組成比、温度においてもほぼ同程度の面積で形成されることを明らかにした。これにより照射光エネルギー密度、その閾値に強く根ざした AOS は、照射光エネルギーに加え、各温度により変化する試料の有する保

磁力 $H_c(T)$ 、周囲の磁化により形成される反磁界を含めた印加磁場 H_{ext} に強く依存する磁場駆動型の磁化反転と全く異なる磁化反転原理を有することを実験的に明らかにした。また、本検討から磁化補償点近傍の試料を用いることで AOS が高安定に磁化状態の保存が可能な記録手法であることを明らかにした。

3-7 参考文献

- [1] 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, A. V. Kimel, *Nature* 472, 205 (2011)
- [2] J. H. Mentink, J. Hellsvik, D. V. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, O. Eriksson, M. I. Katsnelson, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.*, 108, 057202 (2012)
- [3] C. E. Graves, A. H. Reid T. Wang, B. Wu S. de Jong, K. Vahaplar, I. Radu, D. P. Bernstein, M. Messerschmidt, L. Müller, R. Coffee, M. Bionta, S. W. Epp, R. Hartmann, N. Kimmel, G. Hauser A. Hartmann, P. Holl, H. Gorke, J. H. Mentink, A. Tsukamoto, A. Fognini, J. J. Turner, W. F. Schlotter, D. Rolles, H. Soltau, L. Strüder, Y. Acremann, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, Th. Rasing, J. Stöhr, A. O. Scherz, H. A. Dürr, *Nature Materials*, 12, 293–298 (2013)
- [4] 高梨弘毅, 磁気工学入門 -磁気の初歩と単位の理解のために-, 共立出版 (2008)
- [5] L. D. Landau, L. M. Lifshitz, *Physik. Zeits.*, Sowjetunion, 8, 153-169 (1935)
- [6] T. L. Gilbert, *Phys. Rev.*, 100, 1243 (1955)
- [7] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh,

- Th. Rasing, Phys. Rev. Lett. 99, 047601 (2007)
- [8] P. Chaudhari, J.J. Cuomo, R.J. Gambino, Appl. Phys. Lett. 22, 337 (1973)
- [9] 今村修武, 光磁気ディスク製造技術ハンドブック, サイエンスフォーラム
 鎌谷書店, p63 (1991)
- [10] A. Itoh, M. Tanaka, M. Akiyama, T. Ishikawa, T. Seida, K. Nakagawa, 日
 本応用磁気学会誌 (J. Mag. Soc. Jpn.), 25, 3_2, 379-382 (2001)
- [11] P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkranz, K. Witter, J. Appl. Phys,
 66, 756 (1989)
- [12] 綱島 滋, 辻 久男, 小林 正, 内山 晋, 日本応用磁気学会誌(J. Mag. Soc.
 Jpn.), 5, 2, 73-76 (1981)
- [13] C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A.
 Kirilyuk, Th. Rasing, Phys. Rev. B 73, 220402(R) (2006)
- [14] T. Tono, T. Taniguchi, Kab-Jin Kim, T. Moriyama, A. Tsukamoto, T. Ono,
 Appl. Phys. Exp., 8, 073001 (2015)
- [15] Y. Mimura, N. Imamura, T. Kobayashi, Jpn. J. Appl. Phys., 17, 8, 1365-
 1369 (1978)
- [16] H. Katayama, S. Sawamura, Y. Ogimoto, J. Nakajima, K. Kojima, K.
 Ohta, 日本応用磁気学会誌(J. Mag. Soc. Jpn.), 23 , S_1_MORIS_99,
 S1_233-236 (1999)
- [17] J. U. Lemke, U. S. Patent 3541577 A (1967)
- [18] M. H. Kryder, E. C. Gage, T. W. McDaniel, W. A. Challener, R. E.
 Rottmayer, G. Ju, Y.-T. Hsia, M. F. Erden, Proceedings of the IEEE, 96,
 11, (2008)
- [19] H. Mano, H. Yoshikawa, H. Hashiba, Y. Ashizawa, A. Tsukamoto, Y.

- Sasaki, S. Saito, M. Takahashi, S. Ohnuki, K. Nakagawa, *J. Mag. Soc. Jpn.*, 39, 5, 192-195 (2015)
- [20] A. R. Khorsand, M. Savoini, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett*, 108, 127205 (2012)
- [21] B. G. Huth, *IBM Journal of Research and Development*, 18, 2, 100 - 109 (1974)
- [22] K. Vahaplar, A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, D. Hinzke, U. Nowak, R. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* 103, 117201 (2009)

第 4 章 非断熱的エネルギー散逸過程に着目した全光型磁化反転

4-1 超短パルス光照射後の積層薄膜における電子・格子系の過渡応答

前章で、全光型磁化反転 (AOS) が正味の磁化に依存せず、従来の磁場駆動型の磁化反転と大きく異なる磁化反転現象であることを示した。本章では角運動量遷移が行われると考えられる ps 程度の時間までで起きる電子・格子・磁気的各系間の非断熱的エネルギー散逸に着目し、AOS という特異な反転現象について検討を行う。ここで、GdFeCo 薄膜試料群の内包する主軸の電子系と格子系の 2 つの系を磁気とあわせて各系間の非断熱的エネルギー散逸に注目する。図 4-1 に電子系と格子系の相関を磁気を含めて模式的に示す。特に金属内で光エネルギー

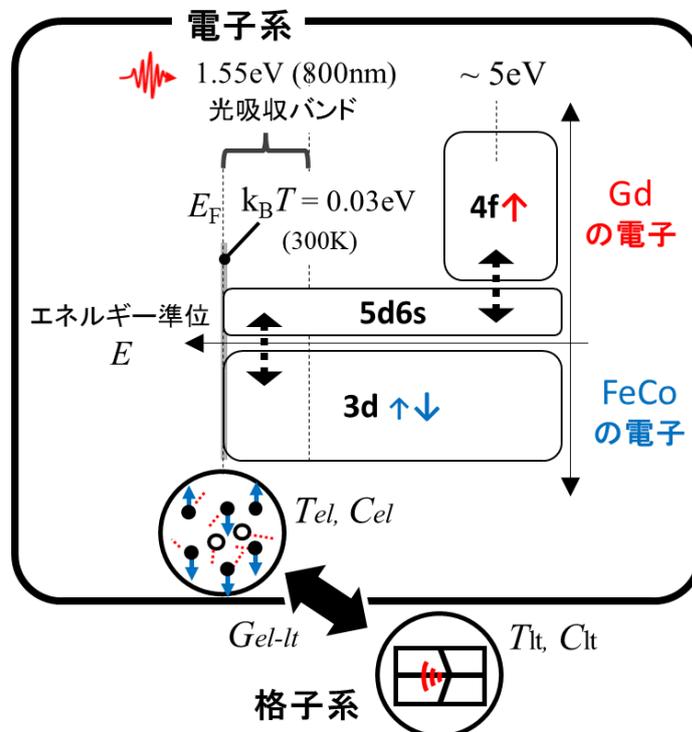


図 4-1 GdFeCo フェリ磁性体の内包する磁気を含めた電子系・格子系の相関の模式図

ギー授受や伝導を担う「Fermi 準位近傍の伝導電子系（主として d 電子）」、各副格子磁化の起源となる「対称性が破れた軌道の電子（Gd では 4f 電子、Fe, Co は 3d 電子）」、そしてアモルファス材料としての短範囲の原子秩序にもとづく「格子」に着目して検討を行う。ここに、 E_F は Fermi 準位を示し、 T_{el} は電子温度、 T_{lt} は格子温度でそれぞれの比熱を C_{el} 、 C_{lt} とし、 G_{el-lt} は各系間の熱的結合定数である。

AOS は ps 程度での副格子磁化間の角運動量遷移により誘起されると考えられている^[1]。これは軟 X 線を用いた元素識別時分解 XMCD 計測(BESSY II, フェムト秒分解装置 FEMTOSPEX) により sub-ps の時間領域で各副格子磁化が異なる時定数で減磁しながら反転していく過程が計測により明らかにされた^[2] ことにもとづく。この様な ps 程度での減磁として考えられる磁気光学応答の減少過程(超短時間減磁)は、既存の検討から数 10 fs のパルス幅を持つパルス光吸収にともなう sub-ps 程度の電子温度上昇で表される電子系の時間発展応答に追従して誘起される^{[3][4]}。また、特に金属磁性体においては格子系が電子系とほぼ平衡化するまでに最低でも数 ps 必要であることが知られている。すなわち、まず電子系の状態分布やそれにもとづく光吸収やエネルギー散逸について検討すれば、AOS のよりミクロスコピックな普遍的反転モデルを検討できると考えられる。しかし、電子系の状態密度・時間応答特性は金属体積や層構成で敏感に変化し、特に GdFeCo アモルファス合金フェリ磁性薄膜では極めて複雑な状態密度を有しておりさらに鋭敏に変化する。磁気光学効果や単元素での検討ふまえた most-localized Liner Muffin Tin Orbital 法により自己無撞着に求めた RE-TM (GdFe, GdCo) の非晶質なクラスターモデルにおけるバンド計算^{[5][6]}の計算も行われているが、この結果においても組成比によって特に Fermi 準位 E_F 近傍の状態密度 (Density of State: DOS) が大きく変化することが論じられている。

通常短時間の光吸収を想定した場合、吸収後のエネルギー散逸に関しては単一の「温度」を想定する。実際、既存の光磁気記録では単一試料温度にもとづく熱拡散方程式でレーザー照射後のエネルギー散逸過程を扱ってきた^{[7][8][9]}。しかし、第3章の結論から AOS は ps 程度の非平衡なエネルギー散逸過程が重要であると考えられている^[2]。ps 程度以下のレーザーパルスと金属表面の光学応答では、過渡的に断熱近似不可能な応答が現れる^{[10][11]}。この超短時間エネルギー吸収後の誘電率変化にもとづく過渡応答に対し、熱伝導方程式この電子系と格子系を温度に従って表現するモデルを二温度モデル^[12]と呼ぶ。

$$C_{el} \frac{\partial T_{el}}{\partial t} = \nabla_z (\kappa \nabla_z T_{el}) + G_{el-ph} (T_{ph} - T_{lt}) \quad (4-1)$$

$$C_{lt} \frac{\partial T_{lt}}{\partial t} = G_{el-lt} (T_{el} - T_{lt}) \quad (4-2)$$

ここに、 T_{el} は電子温度、 T_{lt} は格子温度でそれぞれの比熱を C_{el} 、 C_{lt} とし、 G_{el-lt} は各系間の熱的結合定数である。電子比熱 C_{el} は $C_{el} = \int_0^{\infty} ED(E) \frac{df(E)}{dT} dE$ となり Fermi・Dirac 分布関数 $f(E)$ にもとづいて、Fermi 準位近傍の状態密度 $D(E)$ に従う。また、格子比熱 C_{lt} は原子の短距離的秩序であるアモルファス金属の格子系は Bose・Einstein 分布関数 $b(\omega)$ にもとづく Debye モデルで説明される。ここに $\hbar\omega$ はフォノンのエネルギーで、 $D'(\omega)d\omega$ は振動スペクトルである。このような電子と格子の2つの温度にもとづくエネルギー散逸・伝導は、電気・熱伝導の検討^{[13][14]}で顕わになり、摂動的に電子系に与えられた光エネルギー吸収による過渡応答でも誘電率・伝導率の変化にもとづく反射率や透過率の sub-ps ~ ps 程度の時間変化として現れる^{[10][11][15][16]}。さらに強磁性体 Ni に対する磁気光学効果の時分解計測で明らかになった強磁性共鳴限界を超える超高速応答は、光応答する磁気秩序にもとづく単一のスピン系として考慮し、二温度モデルからの拡張として電子・格子・スピンの三系に拡張した下式で表されるような三温度モ

デル^{[19][20]}も提案されている。

$$C_{el} \frac{\partial T_{el}}{\partial t} = P + G_{el-lt}(T_{lt} - T_{el}) + G_{el-sp}(T_{sp} - T_{el}) \quad (4-3)$$

$$C_{lt} \frac{\partial T_{lt}}{\partial t} = G_{el-lt}(T_{el} - T_{lt}) + G_{ph-sp}(T_{sp} - T_{lt}) \quad (4-4)$$

$$C_{sp} \frac{\partial T_{sp}}{\partial t} = G_{el-sp}(T_{el} - T_{sp}) + G_{lt-sp}(T_{lt} - T_{sp}) \quad (4-5)$$

ここに、 T_{sp} はスピン温度、でその比熱を C_{sp} とし、 G_{lt-sp} , G_{el-sp} は各系間の熱的結合定数である。GdFeCo においても局所的もしくは平均的な系の取扱いに関して主として三温度モデルにもとづいた AOS に関して実験値から磁化反転過程の副格子磁化モデル、温度モデル、バンドモデルにもとづく計算機検討が現在も検討が続けられている^{[21]-[24]}。しかし、磁化 M は $M = \mu_B \int_0^{\infty} \{D(E + \mu_B H) - D(E - \mu_B H)\} f(E, T) dE$ と Fermi 面近傍の状態密度に強く依存する上、GdFeCo は 3 つの磁性の起源の異なる強磁性体の合金によるフェリ磁性体であるため、単純にスピンとして独立に扱うことは難しい。

そこで本論では、各副格子磁化の超短時間減磁が比較的電子系の応答に追従して ps 程度で誘起されていること、空間的な元素間の角運動量遷移も ps 程度で大きく行われていると考えられることから、まず電子系と格子系の二温度モデルを基本として ps 程度の非断熱的エネルギー散逸と AOS の磁化反転現象の特性について検討を行う。具体的には、対象試料が薄膜であることに着目し、磁性層・金属層・誘電体層の膜厚・積層構成を変えることで各系に空間的・体積的な差を設ける。このように非断熱的な各系の励起・散逸過程の差を系統的に分類可能な試料群を作製し、AOS の磁化反転特性について検討を行う。

4-2 作製試料群：積層構造膜厚の異なる GdFeCo/SiN/AlTi 試料群

4-2 作製試料群：積層構造膜厚の異なる GdFeCo/SiN/AlTi 試料群

膜厚方向における電子系の連続性、格子系の連続性を膜厚及び層構成により変えるため、ガラス基板上でマグネトロンスパッタリング法により、SiN (60 nm) / Gd₂₂Fe_{68.2}Co_{9.8} (*l* nm) / SiN (*m* nm) / AlTi (*n* nm) / glass sub., (*l, m, n*) = A {20, 5, 0}, B {20, 0, 10}, C {20, 5, 10}, D {30, 5, 10} の試料群を作製した。

この試料群の積層構造・膜厚の違いは、電子・格子のそれぞれの系そして磁性層の体積の組み合わせを変えたことに相当する。磁性を担う磁性金属層 GdFeCo を誘電体 SiN の間に積層し、電子系および磁性層が孤立した試料 A、電子伝導が可能な非磁性金属層を隣接し磁性層はそのままに電子系の体積を増やした試料 B、一次的な光吸収量はほぼ同等にしつつ試料 B の磁性層と非磁性金属層の間に誘電体を掃引し格子系の体積はそのままに電子系の結合を切断した試料 C、そして試料 C の磁性層を B の総金属層厚と同じにした試料 D となる。それぞれ磁性層膜厚 $Z_{mg} (= l)$ 、連続金属層膜厚 $Z_{el} (= l \text{ or } l+n \text{ (ただし } m=0 \text{ の時のみ)})$ 、

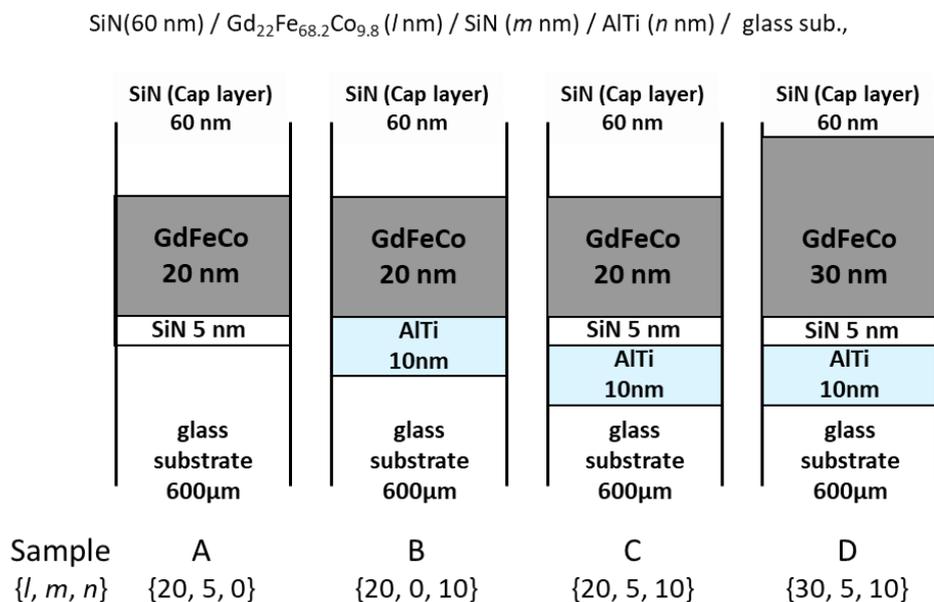


図 4-2 マグネトロンスパッタ法により作製した積層構造・膜厚の異なる GdFeCo 薄膜試料群 A~D

総金属層膜厚 $Z_{\text{lt}} (=l+n)$ とすると、試料 A では $\{Z_{\text{mg}}, Z_{\text{el}}, Z_{\text{lt}}\} = \{20, 20, 20\}$ 、B では $\{20, 30, 30\}$ 、C では $\{20, 20, 30\}$ 、D では $\{20, 30, 40\}$ となる。

これまでに電子系の励起と超短時間減磁の各試料の時間発展について ps 程度の大きな反射率変化と超短時間減磁とそれよりも長い時間においてとその後の歳差運動を伴う緩和という特徴的な 2 つの時間領域で、これら試料群は異なる応答を示すことが、A~C の試料において示されている^[25]。特に大きな反射率変化と外部磁場に依存しない超短時間減磁は連続する金属層の膜厚 Z_{el} に対応することが分かっている。外部磁場に依存せず、超短時間の光吸収に強く依存する AOS において重要と考えられる ps 程度の超短時間減磁は電子系の励起に追従するため、電子系の膜厚 Z_{el} が同等な試料群で AOS の反転特性が類似すると予想される。すなわち A, C と B, D がそれぞれ同様の傾向を示すと予想される。

本試料群に対し同光照射条件下での磁気・光学の時間発展応答を評価するために、全試料に対し All-Optical Pump Probe 法による時間発展計測を行った。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光によりスポット径は 300 μm 、エネルギー密度は 0.7 mJ/cm^2 で光励起し、磁化に対応する磁気光学 Kerr 回転角変化 $\Delta\theta_{\text{K}}$ と電子温度に対応する反射率変化 $\Delta R/R$ の信号を中心波長 400 nm に変換した測定光を用いて計測した。本測定は磁化の初期化のために 420 Oe を膜面法線から 83 deg. 傾けた外部磁場 H_{ext} を印加した。得られた A~D の各試料の Kerr 回転角変化 $\Delta\theta_{\text{K}}$ 及び反射率変化 $\Delta R/R$ の時間発展の測定結果を図 4-3 ~ 4-6 に示す。

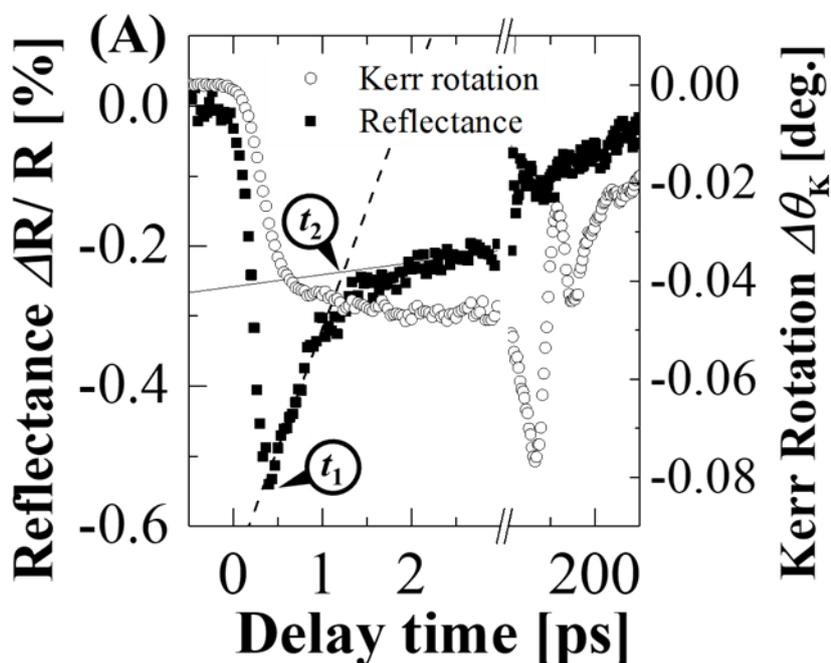


図 4-3 試料 A における回転角変化 $\Delta\theta_K$ ・反射率変化率 $\Delta R/R$ の時間発展応答特性 (励起光強度: 0.7 mJ/cm^2)

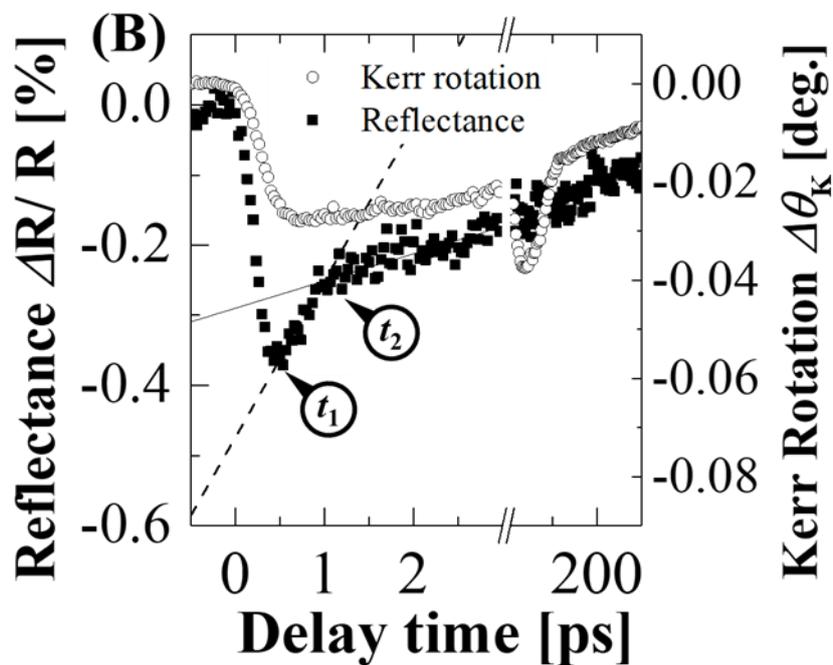


図 4-4 試料 B における回転角変化 $\Delta\theta_K$ ・反射率変化率 $\Delta R/R$ の時間発展応答特性 (励起光強度: 0.7 mJ/cm^2)

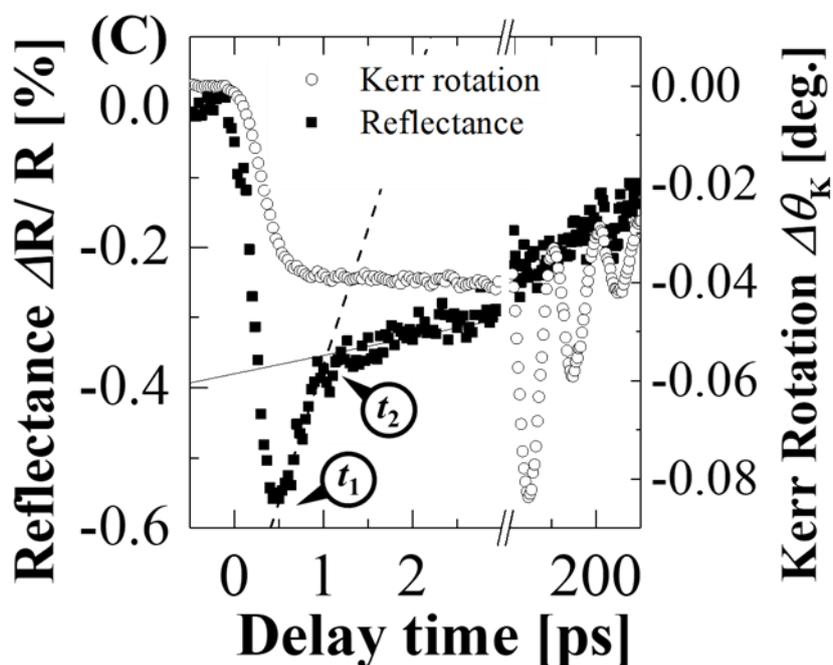


図 4-5 試料 C における回転角変化 $\Delta\theta_K$ ・反射率変化率 $\Delta R/R$ の時間発展応答特性 (励起光強度: 0.7 mJ/cm^2)

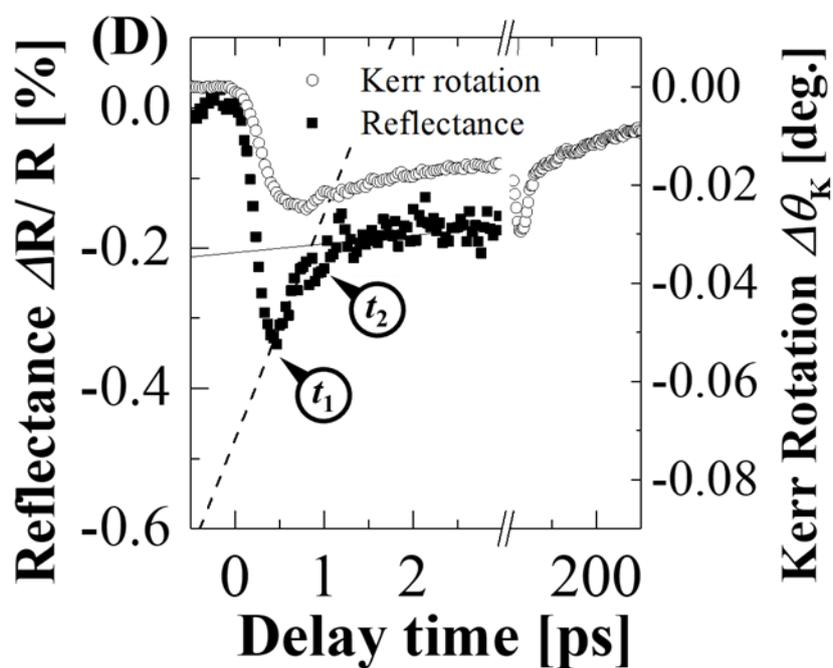


図 4-6 試料 D における回転角変化 $\Delta\theta_K$ ・反射率変化率 $\Delta R/R$ の時間発展応答特性 (励起光強度: 0.7 mJ/cm^2)

いずれの試料構成においても、励起光の試料表面到達 ($\Delta t = 0$) 後 $\Delta R/R$ の急峻な変化とそれに数 100 fs の遅延をもって続く $t < 1$ ps での $\Delta\theta_K$ の急峻な変化、その後数 100 ps に及ぶ歳差運動と重畳した反射率・磁化回復過程を確認できる。電子温度に起因する反射率の変化 $\Delta R/R$ は図中の t_1 ($t \approx 0.5$ ps) でいずれの試料においても最大となる。その後強度は初期値 0.0 に向かい回復し始め、その傾きが図中の t_2 ($t = 0.7 \sim 1.7$ ps 程度) まで大きく変化していることが確認できる。これは、 t_2 で電子温度と格子温度がほぼ平衡状態に達していることを意味している^{[10][12][25][26]}。また t_2 以下の時間で $\Delta\theta_K$ の急峻な変化は収束しており、磁気系もほぼ平衡化していると考えられる。本論文において、各試料の t_2 は t_1 の後 $\Delta t: 0.5 \sim 0.8$ ps での傾きにもとづく近似直線(破線)と 2.3 ~ 3 ps までの傾きにもとづく近似直線(実線)の交点により一次近似的に求めた。 t_2 以降の印加磁場に応答が顕わになる時間領域^[25]では、Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式によって表される 10 GHz オーダーの歳差運動を伴いながら緩和している。

t_1 までにおいて、同じエネルギー密度の励起光照射による $\Delta R/R$ の初期レベルからの変化は各試料それぞれ、A: 約 39 %、B: 約 28 %、C: 約 35 %、D: 約 27% であった。そして t_2 での減磁量 $\Delta\theta_K$ の大小は t_{ue} での $\Delta R/R$ に比例している。すなわち $\Delta R/R$ と $\Delta\theta_K$ の絶対値の最大は、 Z_{el} が 20nm の群 (A {20; 5; 0}, C {20; 5; 10}) と Z_{el} が 30nm の群 (B {20; 0; 10}, D {30; 5; 10}) の 2 つの試料群に分類することができ、その減衰量の変化率の相対比は Z_{el}^{-1} に比例している。このように減磁量には明確な層構成依存性が存在する^[25]。また、この初期の超短時間減磁の時定数を double exponential fitting により求めると、いずれの場合も約 100 fs でほぼ一致する^[25]。これはすなわち 1 ps 程度の極短時間においては、可視光域で主として応答する遷移金属の電子系が受けるエネルギーが導電性金属膜厚 Z_{el} で分配され、それに付随する M_{TM} もその分配されたエネルギー

に比例した量を受け取ることの意味する。以上の結果から単純に考えると、前述の通り超短時間の光吸収に強く依存し磁化が反転する AOS の反転閾値は Z_{el}^{-1} に比例するはずである。すなわち、AOS を誘起可能な最小光エネルギーは Z_{el} が 20nm の群 (A, C) と Z_{el} が 30nm の群 (B, D) の 2 つの群に分けられ、試料群 (A, C) では試料群 (B, D) に対しより効率よく 70 % 程度の光照射強度で誘起されることが予想される。

4-3 膜厚の異なる GdFeCo/SiN/AlTi 積層試料群における全光型磁化反転

同組成の磁性層を有しながら、これら ps オーダーと数 100 ps 程度で異なる特徴を持つ試料群 A~D において、磁場印加せずに中心波長 800 nm パルス幅 90 fs (半値全幅) の Gaussian レーザーパルスで膜面側より照射することにより室温にて磁化反転を誘起し、形成磁区を偏光顕微鏡の磁気光学像にて観察し、形成される磁区の領域サイズを計測した。AOS による磁区形成から十分に時間の経過した本計測においても、前章と同様に磁区形状の変化は形成磁区に対し十分に小さいと考えられる。

また、本観察において外部から磁場を印加せずに、超短パルス光により形成される二種類の磁区について評価を行った。一つは全光型磁化反転 AOS により形成される磁区であり、二つ目は AOS よりも光強度の強い領域で形成された熱磁氣的核形成 (Thermo-Magnetic Nucleation: TMN) により形成される磁区である。TMN は磁場印加をしない場合、 μm オーダーと思われるランダムな多磁区構造を形成する。TMN は 2 章 (2-6) 節で述べたように既存の熱磁気記録に近い熱磁氣的核形成による磁区形成過程にもとづくと考えられる。このような AOS と TMN の形成磁区サイズの試料 A~D における照射光強度依存性を図 4-7 に示

す。

灰色の領域は TMN によって形成された磁区を示し、外側の円は AOS により形成された磁区を表している。形成された磁区のサイズは、図に挿入されたスケールバーを基準にする。結果から Z_{el} が大きい程、TMN により形成された磁区のサイズが小さくなることがわかり、 Z_{el} が 20 nm の試料群 (A, C) と 30 nm (B, D) の試料群で大別できる。さらに、図 4-3 (a) から A と C の試料群における急速な段差状の磁化の減少による $\Delta\theta_K$ の値は、B と D の試料群よりもおよそ 1.5 倍大きいことが確認できる。励起光強度閾値はこの急速な段差状の磁化の減少による $\Delta\theta_K$ で規格化するとほぼ同等の値をしめす。すなわち、TMN は連続金属層内で吸収した光エネルギーを分配し、ほぼ平衡化した時に閾値以上のエネルギー密度を磁化を持つ領域で磁区が形成されることが示される。そして、前節

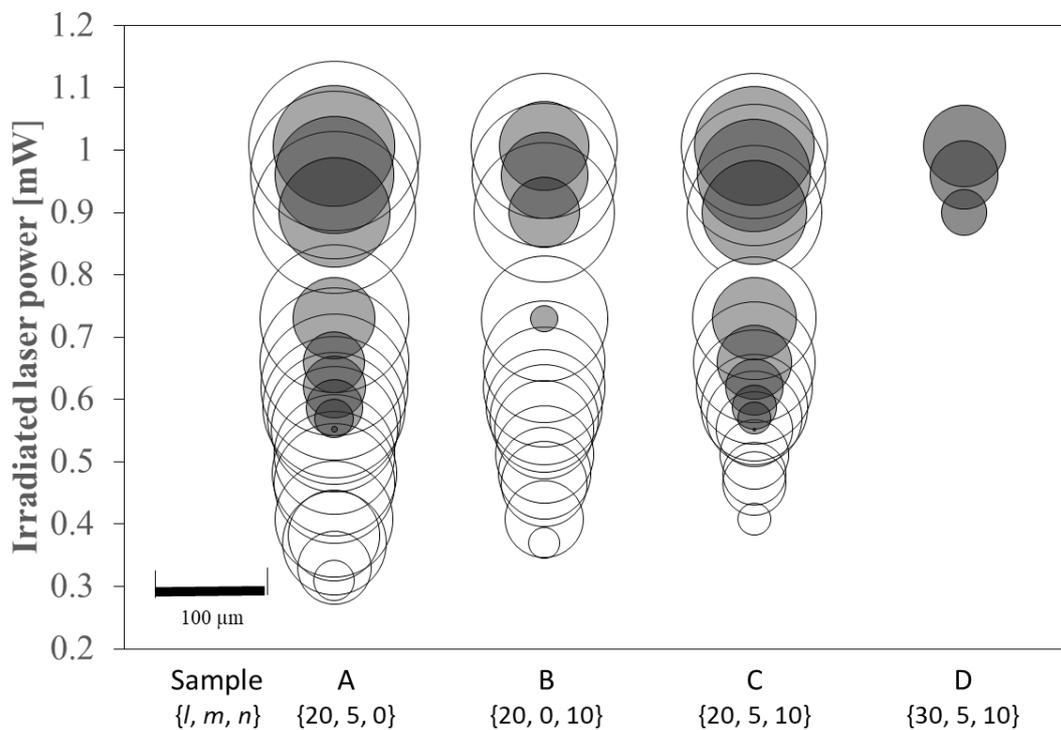


図 4-7 隣接・積層材料の異なる GdFeCo 薄膜の AOS, TMN の照射光強度依存性

の考えに則り、磁気系は確かに超短パルス光から金属層膜厚の逆数に比例したエネルギーを吸収していることが確認できる。

これに対し AOS は全く異なる傾向を示す。TMN 同様、AOS も図 4-7 に示すように照射光強度に一意に依存するため、吸収したエネルギーに依存することは明らかである。しかしながら、AOS は TMN とは明らかに異なった層構成依存性を示している。A と B、C の反転強度閾値は A に次いで B、そして C となり、高強度な領域では A が最大となり B と C が同程度の形成磁区サイズを示す。さらに、D の試料においては AOS による磁区形成が確認できない。

AOS は電子系のエネルギー吸収後の電子温度 T_{el} の上昇に伴って、RE および TM 副格子の減磁が異なった時間スケールでおきる ($\tau_{Fe} = 100 \pm 25$ fs, $\tau_{Gd} = 430 \pm 100$ fs) [2]。この際の減磁過程には電子系が吸収し、到達する電子温度が重要であることが示唆されており、これまでの全ての試料において空間的に Gaussian で励起した際、同一試料上で形成磁区サイズが照射強度に一意に対応していることから一致をみている。ただし、その後の散逸過程に関しては図 4-3~6 に示す通り試料群 A~D において異なる。その散逸過程は図 4-3~6 に示したように 500 fs 以降急峻に変化し、格子系との概ね平衡化した時刻を示す t_2 で 1 次近似的に変曲点を持つ。A~D の試料群における t_2 は試料 A が最も長く、B、C そして D と短くなる。この順序は AOS の磁区形成エネルギー密度閾値の低い順番に対応し、 $t = 0 \sim t_2$ が長い試料程 AOS を高効率に誘起していることを意味している。すなわち、AOS は到達電子温度のみには依存せず、その後の電子系による散逸過程もその反転において重要であることを示唆している。したがって次節にて、より単純化した系において電子による空間的な吸収エネルギー散逸の AOS への寄与の可否について検討を行った。

4-4 磁性層膜厚の異なる GdFeCo 単層試料群における全光型磁化反転

4-4 磁性層膜厚の異なる GdFeCo 単層試料群における全光型磁化反転

前節により、超短パルス光照射による電子温度 T_{el} の上昇が連続する金属層膜厚 Z_{el} に対応し、AOS が照射強度とそれに伴う電子温度の上昇に一意に対応しつつも、そのエネルギー散逸過程に強く依存していることを示唆した。ただし、前述の実験では膜厚に対する議論を単純化できない。そこで次に積層構造により大きく異なる光吸収後のエネルギー散逸過程を系統的に検討するために、電子系の膜厚 Z_{el} が段階的に厚くなり、光の侵入長に相当する 11.0 ± 1.4 nm を含む前後の磁性層膜厚を持つ試料群：SiN(60 nm) / Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4}(l nm) / SiN(5 nm) / glass sub. ($l = 10, 15, 20, 25, 30$ nm) を作製した (図 4-8)。これらの試料は、その GdFeCo の膜厚で深さ方向のエネルギー散逸過程が明らかに異なる。その Z_{el} は l と同様であると考えられる。加えて、MPMS3 による計測より、これらの試料群では室温で磁化補償点近傍における正味の磁化 M_{net} に対する外部磁場曲線が異なる磁気特性が存在する ($0.5 - 45$ emu/cm³) こと、及びいずれも垂直磁気異方性を有することを確認している。また、本組成・室温、膜厚 $l = 15$ nm 近傍で磁化補償点を確認した。

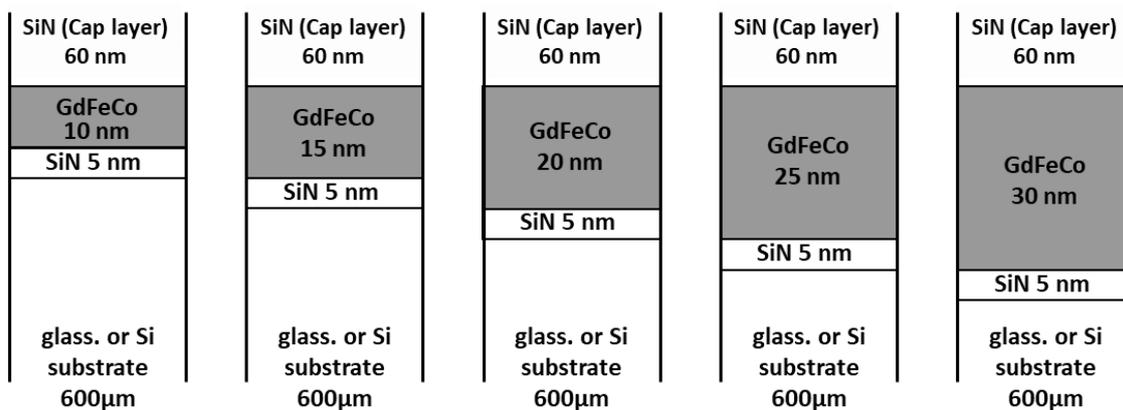


図 4-8 GdFeCo 磁性層膜厚 l が光の侵入長程度で段階的に異なる試料群 ($l = 10, 15, 20, 25, 30$ nm)

作製した磁性層膜厚の異なる GdFeCo(l)試料群における全光型磁化反転の形成磁区について 4-3 同様評価を行った。その結果について図 4-9 に示す。円のサイズはレーザー照射によって形成された磁区のサイズを示している。

本結果において、各試料では AOS の形成磁区サイズは照射する強度に依存している。室温の磁化補償点近傍に関係なく、AOS 形成磁区サイズは磁性層膜厚 l に対して線形に増加する。すなわちこれは、投入した光エネルギーと反転体積が比例することを意味し、AOS が GdFeCo の局所的な吸収エネルギー密度閾値に一定の値を持つことを示唆するものである。そこでその反転エネルギー密度閾値について、照射光分布に対して一意に評価可能であると考え計算を行う。

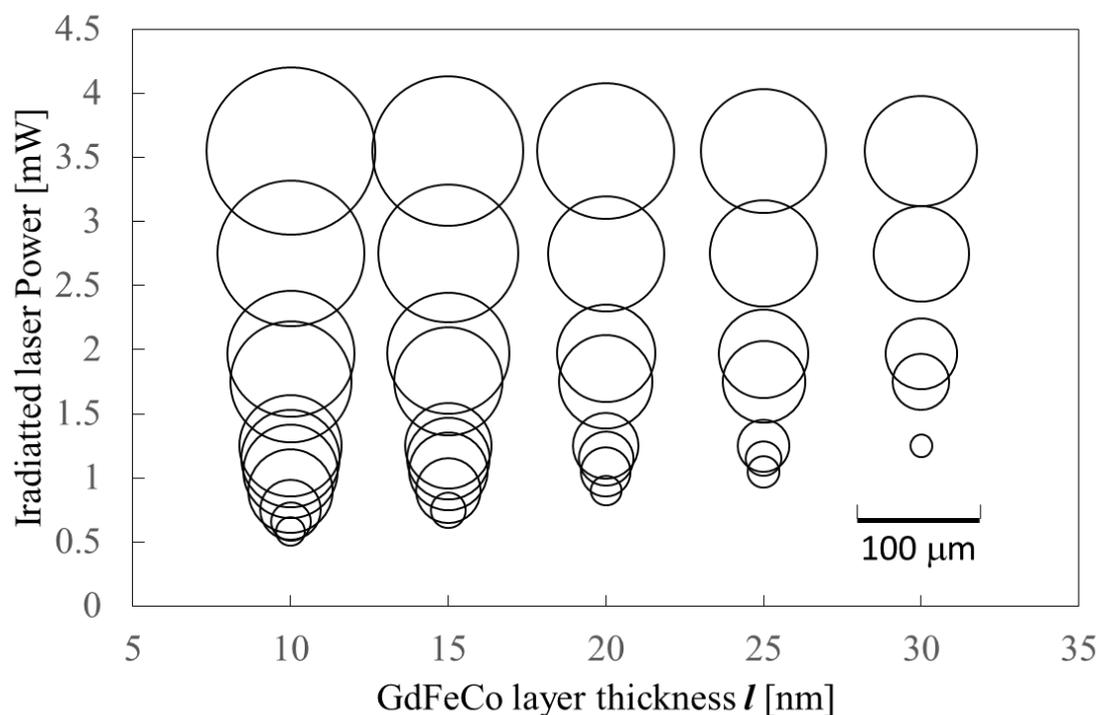


図 4-9 磁性層膜厚の異なる試料群 SiN (60 nm) / Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4} (l) / SiN (5 nm) / glass. における AOS の形成磁区サイズの照射強度依存性

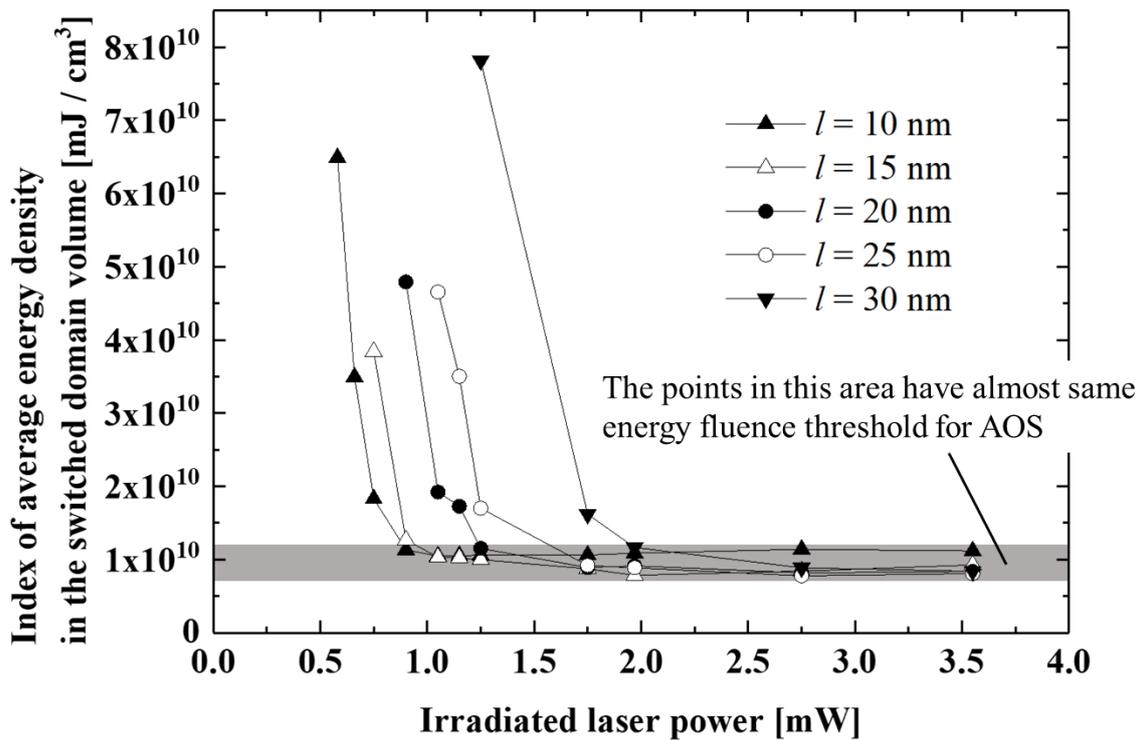


図 4-10 照射光の Gaussian 分布から見積もった各試料と照射強度における照射エネルギー密度の AOS 磁区形成閾値

深さ方向のエネルギー散逸過程に関して検討するため、反転した磁区の単位体積当たりの平均照射光強度閾値を計算し、図 4-10 で示すようにほぼ一定の値となった。本モデルでは、領域直径が 5 ~ 120 μm 程度、厚みが 10 ~ 30 nm であり、反転した磁区を円柱形であると仮定した。見積もった結果より AOS 形成磁区サイズは磁性層膜厚が減少するとともに線形に増加した。また、約 1.5 ~ 4 mW の高強度レーザー照射領域では、ほぼ一定の値となる。しかし一方で、1 ~ 2 mW 以下のレーザー強度では見積もった値は、高強度領域での値より 10 倍高かった。そして、反転磁区の形成するレーザー強度は、磁性層膜厚 l を減少させることで減少する。これは単純には AOS が各試料のもつ一定の反転誘起エネルギー密度閾値に依存するという既存の知見に反する。

電子の光エネルギー吸収の直後に吸収され、その強度は深さ方向に指数関数

的に減少する（光の規格化強度分布 $I_{\text{nor}} = \exp(-4\pi k/\lambda z)$ [W]）。特に Gaussian の中心付近では、図 4-11(a)に示すように大きな勾配を持つ。

これらの薄膜は $\lambda = 800 \text{ nm}$ における光の侵入長 $11.0 \pm 1.4 \text{ nm}$ 程度の磁性層膜厚をもつため、その相対的な電子温度分布は同じく図 4-11 (a)のようになる。すなわち、低強度の光を照射した場合、照射面近傍では AOS に必要な十分な光吸収が行われたとしても、裏面近傍で吸収量が不足する場合が想定される。ここで、sub-ps という超短時間で吸収されるエネルギーは形成された電子温度勾配にもとづいて金属磁性層の深さ方向で緩和されると考えると、図 4-11 (b) のように膜厚方向に平均化し、エネルギー密度が閾値を越えた領域で磁区を形成するはずである。すなわち、膜厚が厚いほど形成磁区面積は小さくなり、照射強度が低く、照射面とその裏面で光吸収時の温度状態の差が大きいほど形成磁区面積の差は大きくなることを意味する。そして、図 4-10 において高強度照射の領域でこの形成磁区面積と膜厚の体積と照射光強度の関係がほぼ一定の値を取るといことは、逆説的に空間的エネルギー散逸を想定してもなお既存の知見と

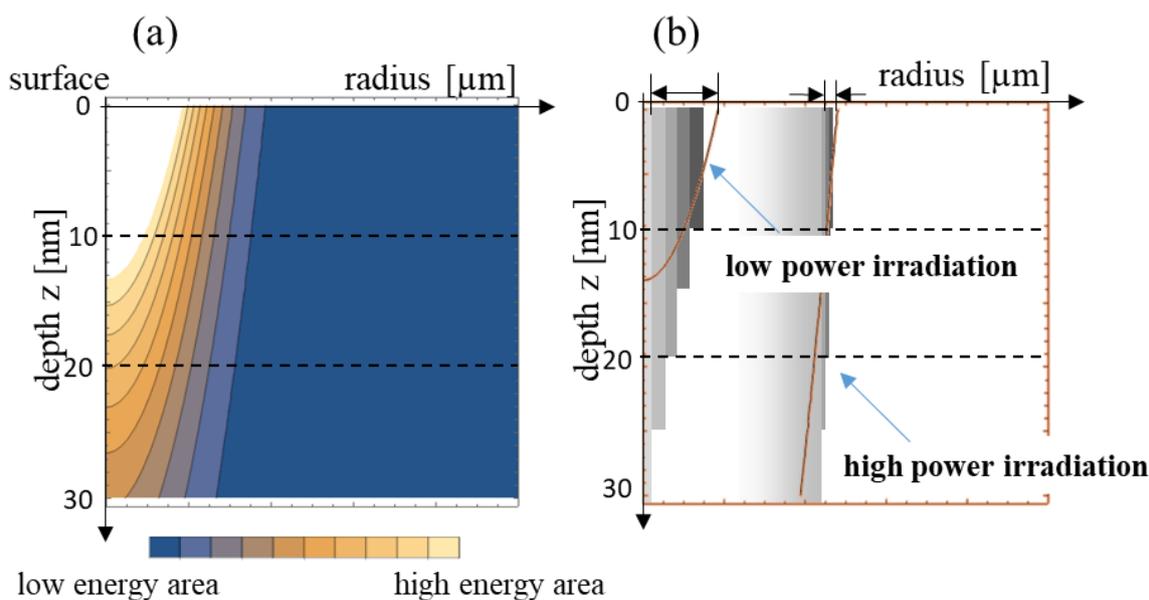


図 4-11 (a) 膜厚方向への強度分布と (b) それにもとづく膜厚方向への平均化の模式図

4-4 磁性層膜厚の異なる GdFeCo 単層試料群における全光型磁化反転

同様、AOS 現象が局所的なエネルギー密度閾値を越えた領域で磁区を形成することを示している。

このようなエネルギーの膜厚方向への平均化を仮定するのであれば、AOS において ps 程度の時間域における電子系による空間的な非断熱的エネルギー散逸過程が重要な役割を担うことを示唆することができる。特に表面からの深さ方向のエネルギー拡散が顕著に表れることを意味し、工学的知見として積層構造により AOS 現象の光照射エネルギーに対する励起効率を変えることが可能であることも示した。

4-5 本章のまとめ

本章では、GdFeCo 試料において超短パルス光照射後に生じる特異な磁気・光学応答を示す超短時間の非断熱エネルギー散逸過程に着目し、その AOS との関連について検討を図った。これに対し、対象試料が薄膜であることから、膜厚・積層構成を変えることで各系に空間的・体積的な差を設け、各系の応答の差を時分解計測および反転形成磁区から単純に検討する。磁気・光学応答において異なる緩和特性を確認した試料群：SiN (60 nm) / Gd₂₂Fe_{68.2}Co_{9.8} (*l* nm) / SiN (*m* nm) / AlTi (*n* nm) / glass sub., {*l, m, n*}=A {20, 5, 0}, B {20, 0, 10}, C {20, 5, 10}, D {30, 5, 10} を作製し、種々の照射エネルギーにおける磁区形成実験を行った。本実験においては全光型磁化反転 (AOS) による形成磁区と、減磁後に周囲の漏洩磁界により誘起される熱磁気的多磁区形成現象 (Thermo - Magnetically created Nucleation: TMN) による形成磁区の 2 種類の磁区が形成される。

計測結果から連続した金属層膜厚 Z_{el} に対応する反射率変化率の急峻な変化 (t_1 における最大変化量) および超短時間減磁と傾向が一致する TMN の形成磁区サイズ依存性と異なり、AOS は異なる傾向を有することを明らかにした。た

だし、これまでの検討と同様に照射強度と形成磁区の関係は各同一試料上においては一致する。そして、AOSの傾向は超短時間の電子系による格子系との平衡化の変曲点(t_2)の大きさと傾向が一致することを示した。このことからAOSは超短時間の電子系によるエネルギー吸収のみならず、その後のps程度の電子系によるエネルギー散逸過程に強く依存することを示唆した。

そこで、次に磁性層膜厚の異なる単層試料群：SiN(60 nm)/Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4}(l)/SiN(5 nm)/glass sub. ($l = 10\text{-}30$ nm: 光の侵入長に相当する 11.0 ± 1.4 nm) に対し、AOSの形成磁区評価を同様に行ったところAOS誘起限界近くの低強度光照射側において、高強度側で一定であった反転誘起可能なエネルギー閾値が急峻に上昇し、その強度が磁性層膜厚に依存することを明らかにした。これにより、AOSにおいてps程度の時間域における電子系による空間的な非断熱的エネルギー散逸過程が重要な役割を担うことを示唆した。

4-6 参考文献

- [1] J. H. Mentink, J. Hellsvik, D. V. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, O. Eriksson, M. I. Katsnelson, Th. Rasing, Phys. Rev. Lett., 108, 057202 (2012)
- [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, A. V. Kimel Nature, 472, 205 (2011)
- [3] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett., 76, 4250 (1996)
- [4] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, Nature Mater., 9, 259 (2010)

- [5] 田中宏志, 高山新司, 藤原毅夫, 日本応用磁気学会誌 (J. Mag. Soc. Jpn.), 15, 2 (1991)
- [6] H.Tanaka, S. Takayama, J. Appl. Phys., 70, 6577 (1991)
- [7] 今村修武, 光磁気ディスク製造技術ハンドブック, サイエンスフォーラム 鎌谷書店 (1991)
- [8] 佐藤勝昭, 深道和明, 五味学, 片山利一, 阿部正紀, 光磁気ディスク材料—基礎および次世代への展望, 工業調査会 (1993)
- [9] B. G. Huth, IBM Journal of Research and Development, 18, 2, 100 - 109 (1974)
- [10] S. I. Anisimov, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 58, 337-340 (1970)
- [11] F. V. Bunkin, A. E. Kazakov, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 59, 2233-2243 (1970)
- [12] M.I. Kaganov, I.M. Lifshitz, L.V. Tanatarov, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 31, 2, 232, (1957)
- [13] V. V. Bondarenko, I. F. Kvartskhava, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 28, 191-198 (1955)
- [14] S. V. Lebedev, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 32, 199-207 (1957)
- [15] R. W. Schoenlein, W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, G. L. Easley, Phys. Rev. Lett., 58, 1680 (1987)
- [16] S. I. Anisimov, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 58, 337-340 (1970)
- [17] F. V. Bunkin, A. E. Kazakov, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 59, 2233-2243 (1970)
- [18] R. Rosei, D. W. Lynch, Phys. Rev. B, 5, 10 (1972)
- [19] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett., 76, 4250 (1996)
- [20] M.B. Agranat, S.I. Ashitkov, A.B. Granovskii, G.I. Rukman, Zh. Eksp.

- Teor. Fiz., 86, 4, 1376, (1984)
- [21] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, *Nature Mater.*, 9, 259-265 (2010)
- [22] J. H. Mentink, J. Hellsvik, D. V. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, O. Eriksson, M. I. Katsnelson, and Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.*, 108, 057202 (2012)
- [23] J. Barker, U. Atxitia, T. A. Ostler, O. Hovorka, O. Chubykalo-Fesenko & R. W. Chantrel, *Scientific Reports*, 3, 3262 (2013)
- [24] C. E. Graves, A. H. Reid T. Wang, B. Wu S. de Jong, K. Vahaplar, I. Radu, D. P. Bernstein, M. Messerschmidt, L. Müller, R. Coffee, M. Bionta, S. W. Epp, R. Hartmann, N. Kimmel, G. Hauser A. Hartmann, P. Holl, H. Gorke, J. H. Mentink, A. Tsukamoto, A. Fognini, J. J. Turner, W. F. Schlotter, D. Rolles, H. Soltau, L. Strüder, Y. Acremann, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, Th. Rasing, J. Stöhr, A. O. Scherz, H. A. Dürr, *Nature Materials*, 12, 293–298 (2013)
- [25] T. Sato, S. Toriumi, A. Tsukamoto, A. Itoh, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 36, 82 (2012)
- [26] J. Hohlfeld, S. S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias, *Chem. Phys.*, 251, 1, 237-258 (2000)

第 5 章：電子比熱に着目した超短時間エネルギー散逸と

全光型磁化反転

5-1 超短時間エネルギー散逸過程と局所熱力学的平衡

前章では、特に電子に依存した ps 程度までにおける電子-格子系間非断熱的エネルギー散逸過程での膜厚方向への空間的エネルギー散逸が AOS 現象に対し大きく寄与することを示した。そして、電子系による空間的エネルギー散逸が電子温度の平衡化に律則することを示唆した。しかし、前章での検討では各層膜厚・積層構造が異なる試料群を用いたため、試料内での励起光学的条件が同等ではなく試料全体で吸収する光エネルギーの総量が異なる。すなわち、散逸過程が電子温度に律則するという仮定を検討するためには、その散逸が大きく異なる構造を有しつつ、光吸収条件がほぼ同一な試料群において検討する必要がある。

そこで、本章では同等の光吸収分布を持ちながら電子系のエネルギー分配特性が大きく異なるような試料群を考えた。まず、AOS が根差す角運動量遷移を生じるような光吸収後 ps 程度において、電子系のみで律則した時間・空間に局所的な熱的平衡を仮定する。この場合、電子系によるエネルギー分配がエネルギーの量子統計状態としての熱分配と同等に捉えられる範囲においては、温度という指標を用いて熱統計的に検討することができる。そして、電子系、電子-格子平衡系における熱特性の異なる隣接金属層を含む積層構造における AOS の励起効率について検討を行い、「非断熱的エネルギー散逸過程」における「局所熱力学的平衡」を仮定し、その AOS に対する電子系によるエネルギー散逸の寄与

を検証する。

金属中において量子統計状態から導かれる電気伝導や熱伝導を担うのは主としてフェルミ面近傍の伝導電子系と格子系である^{[1][2]}。その比熱は $C = C_{\text{el}} + C_{\text{ph}}$ と電子比熱と格子比熱の和で表される。伝導電子系は状態密度 $D(E)$ と Fermi-Dirac 分布関数 $f(E)$ にしたがって、その内部エネルギー U_{el} は $U_{\text{el}} = \int_0^{\infty} ED(E)f(E)dE$ となる。すなわちその電子比熱は $C_{\text{el}} = \frac{d(\Delta U_{\text{el}})}{dT} = \int_0^{\infty} ED(E) \frac{df(E)}{dT} dE$ となり状態密度に従う。 $k_{\text{B}}T \ll E_{\text{F}}$ で表されるような低温では、 $C_{\text{el}} = \frac{\pi^2}{3} D(E_{\text{F}}) k_{\text{B}}^2 T$ となり、 $\frac{\pi^2}{3} D(E_{\text{F}}) k_{\text{B}}^2$ を電子比熱係数 γ と呼ぶ。原子の短距離的秩序であるアモルファス金属の格子系は Bose-Einstein 分布関数 $b(\omega)$ の振動スペクトル ω を物質中を伝搬する格子波の音速 s と波数 q の積とした Debye モデルで説明される。格子系の内部エネルギーは $U_{\text{lt}} = \int_0^{\omega_{\text{D}}} \hbar\omega D'(\omega) b(\omega) d\omega$ である。ここに $\hbar\omega$ はフォノンのエネルギーで、 $D'(\omega) d\omega$ は振動スペクトルである。ここから Debye モデルにおける 1 mol あたりの格子比熱 C_{lt} は、Debye 温度 $\Theta_{\text{D}} (= \hbar\omega_{\text{D}}/k_{\text{B}})$ 、温度指数 $x_{\text{D}} (= \Theta_{\text{D}}/T)$ 、Boltzmann 定数 k_{B} 、Avogadro 数 N_{A} を用い、 $C_{\text{lt}} = \frac{d(U_{\text{lt}})}{dT} = 9k_{\text{B}}N_{\text{A}} \int_0^{x_{\text{D}}} \left\{ \frac{e^x x^4}{x_{\text{D}}^3 (e^x - 1)^2} \right\} dx$ で表される。

通常の熱平衡系においては室温(約 300 K)において金属固体においても格子系が支配的であり、低温で露わになるような電子温度の寄与は小さく、Debye モデルの比熱式にもとづく Dulong-Petit 則に従う。しかし、極低温環境下と同じく超短時間領域においては電子温度があらわになる。これまでに検討されてきた金属、特に金属薄膜におけるエネルギー散逸はまず主に電子系による散逸からはじまる^{[3]-[7]}。すなわち既存の研究から下記の様な手続きが想定される。

フェムト秒レーザーパルスを金属試料に照射した際、照射した光は数 fs 以下

5-1 超短時間エネルギー散逸過程と局所熱力学的平衡

で局所的に光子-電子相互作用によって吸収される。これをマクロに取り扱おうと消光係数にもとづく光強度分布として表現できる。この後局所的に励起された電子は状態分布にもとづいて、電子系として過渡的に量子的統計平衡状態を形成する(数 10 fs~数 ps)。本検討では波長 800 nm (1.55 eV) の励起光源を用いており、温度にもとづく 300 K での状態分布のゆらぎ($k_B T = 0.26$ eV)よりも十分大きい。その後、電子温度として表現される過渡的な局所熱力学的平衡にもとづいて、電子系によるエネルギー分配が行われると予想する。ただし、この間にも系間のエネルギー散逸は生じており数 ps~数 10 ps で電子系・格子系は平衡化する。この平衡化以降は断熱的な平衡状態として従来の運動方程式 (Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式、熱拡散方程式など)にもとづいて表現される。

5-2 作製試料群：下地金属種の異なる GdFeCo/Metal 試料群

光吸収量を同等にしつつ、電子比熱・格子比熱の大きさの組み合わせの異なる試料群：SiN(60 nm) / Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4} (10 nm) / { E : SiN, F : Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4}, G : Al₉₀Ti₁₀, H : Cu } (5 nm) / glass sub.をマグネトロンスパッタ法で作製した(図 5-1)。本試料群は電子比熱係数 $\gamma(= C_{el}/T)$ が大きな Fe, Co を持つ試料 E, F、

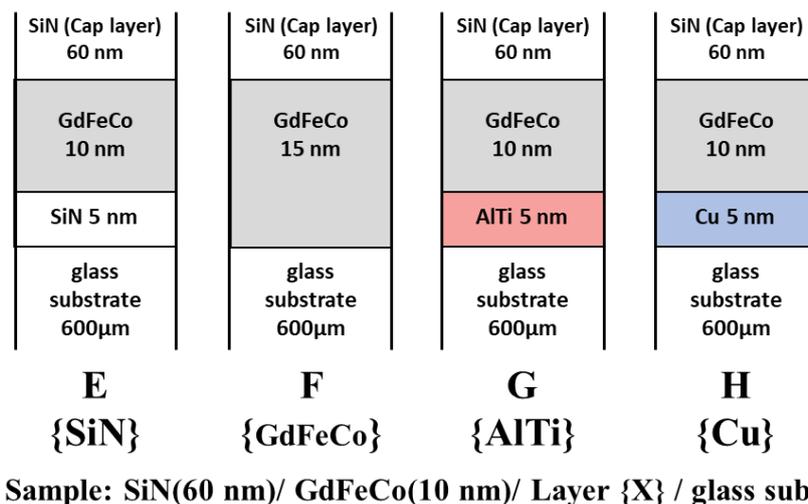


図 5-1 下地金属の異なる GdFeCo/Metal 試料群の層構成

電子比熱係数 γ が小さな Cu を用いた試料 G、電子比熱係数 γ は E, F と G の半分程度でありながら比熱 C が 2 倍程度の AlTi を用いた試料 F からなる。磁性層の主成分であり、3d 遍歴電子系である Fe の電子比熱係数 γ は $5 \text{ mJ} / \text{mol K}^2$ 、Co は 4.7, Al は 1.35, Ti は 3.5, Cu は 0.688 である (表 5-1 参照) [8]。ただし、特に遷移金属合金では、Slater-Pauling curve においては合金比に対し極めて単純にその磁気モーメントを予測できるものの、電子比熱係数 γ はその合金比に対し最大 10 倍ほどと大きく変化し、複雑な曲線となる [9][10]。これは電子比熱係数 γ は $\frac{\pi^2}{3} D(E_F) k_B^2$ であり、フェルミ面近傍の電子の状態密度 $D(E_F)$ に強く依存することを意味する。そして、GdFeCo 合金のフェルミ面近傍の状態密度 $D(E_F)$ はその合金比に対し大きく変化する [11][12] ことは前章で述べた通り、通常計算による検討は難しい。ただし、参考文献[9]との比較より、今回用いた $\text{Fe}_y\text{Co}_{100-y}$ の合金比 y は 87.5 であり $y = 90 \sim 86$ の実験値から FeCo の合金比にもとづく電子比熱係数 γ は 4.1 ~ 4.2 程度と予測され、Al や Cu に対し相対的に Fe, Co と同等であると言える。

表 5-1 各金属元素の消光係数および比熱と電子比熱係数[8]

	Gd	Fe	Co	Al	Ti	Cu
消光係数 k (波長800nm)	1.55	3.8	4.7	8	3.33	5.26
比熱 C J / kgK	298	456	427	917	528	386
電子比熱係数 γ mJ / mol K ²	-	5	4.7	1.35	3.5	0.69

また、特に散逸過程における寄与を検討し、AOS の高効率励起、すなわちより低い光照射エネルギーでの AOS 誘起について系統的に検討するために、照射光から受け取るエネルギーをほぼ同程度となる試料群を設計した。消光係数にもとづいた光の規格化強度分布 $I_{\text{nor}} = \exp(-4\pi k/\lambda z)$ [W] の計算結果を図 5-2 に示す。本計算結果から異なる金属が隣接した試料 F ~ G はいずれも総エネルギー吸収量としてほぼ同一になることが確認できる。

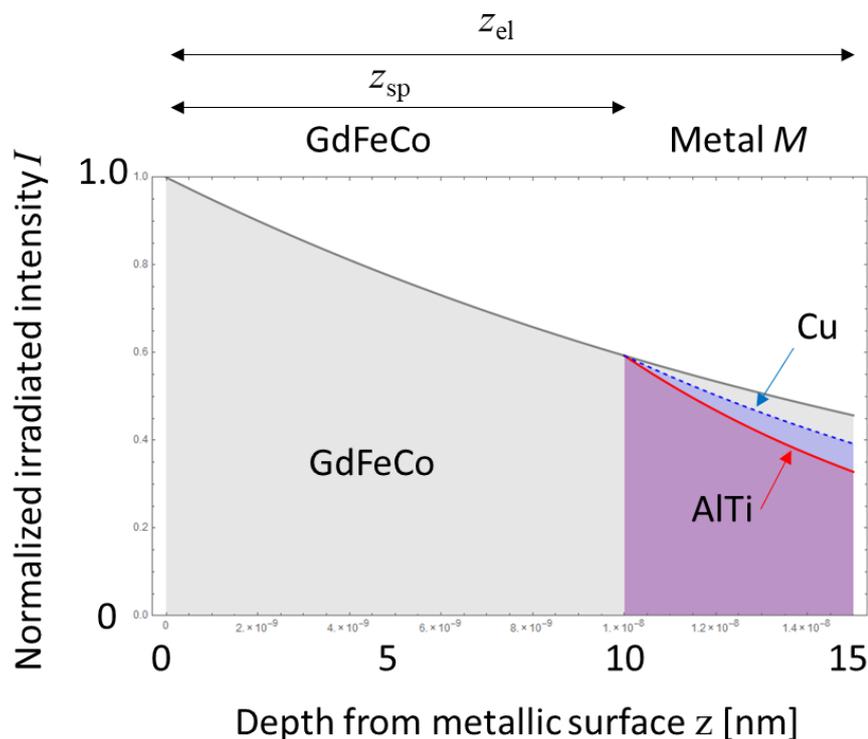


図 5-2 波長 800nm の Gaussian 分布のレーザーで励起した際の金属薄膜内の光強度分布

5-3 GdFeCo/Metal 試料群における超短時間局所平衡系エネルギー分配と比熱

前節で算出した金属薄膜内での深さ方向への規格化光強度分布(図 5-2)を膜面内方向に拡張する。実験条件と同程度のスポット径で Gaussian の強度分布を持つ波長 800 nm の光を仮定した場合、その金属試料内における強度分布は Gaussian の頂点が照射された試料表面の点を 1 とすると図 5-3 のようになる。第 3~4 の検討から本論文で用いた実験条件ではおよそ 5~120 μm の磁区形成を行ってきた。その磁区形成範囲においては、図 5-3 に示すように膜厚方向に対し膜面内方向は十分に均一に励起される。すなわち、超短時間のエネルギー散逸を想定した場合、膜面内方向のエネルギー散逸よりも膜厚方向のエネルギー散逸が極めて支配的であると考えられる。そして、この光強度分布にもとづいて、

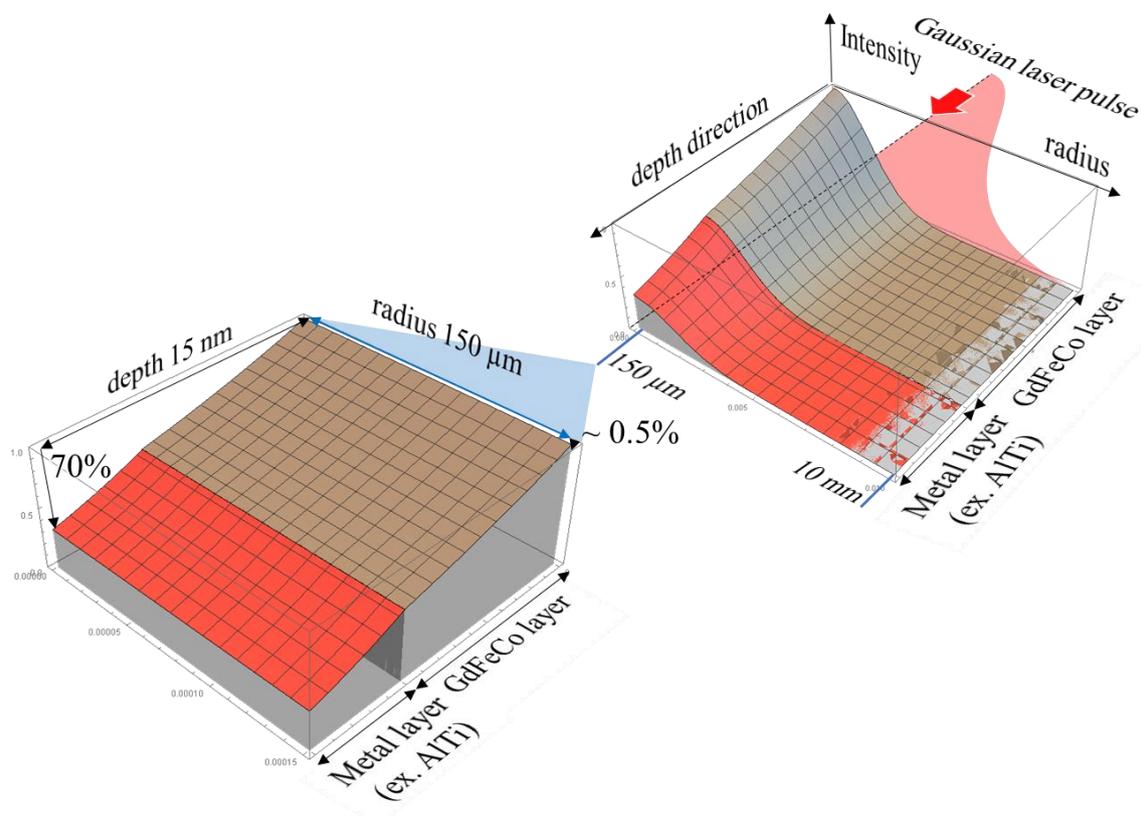


図 5-3 波長 800nm の Gaussian 分布のレーザーで励起した際の金属薄膜内の光強度分布

数 fs で光子・電子相互作用により対応する軌道の電子によりエネルギーとして吸収される。このエネルギーを吸収した伝導電子は数 10 fs 程度の量子統計的に取り扱えるような状態分布をとると仮定する。

金属層が吸収した全エネルギー $E_{\text{abs}} = \int e^{-4\pi k/\lambda z} dz$ [J] が、数 ps で伝導電子により狭空間においてエネルギー分配されたとすると、その量子統計に従う電子系の熱力学的平衡状態はその比熱にもとづいて、第一義的に電子温度 $T_{\text{el}} = \sqrt{E_{\text{abs}} / (\sum A \cdot \gamma)}$ [K] と表現される。ここで A [at. %] は原子量である。ここで、他の系への散逸は一切無視する。そしてこの電子温度にもとづいて、エネルギーが金属薄膜内で散乱されずに平衡化、エネルギー分配されたとすると、そのエネルギーはそれぞれの金属において $E_{\text{each}} = A \cdot \gamma T_{\text{el}}^2$ [J] と表現される。

このような「量子統計に従う電子系の熱力学的平衡状態 T_{el} 」を仮定したときに想定されるエネルギー分配・散逸プロセスを計算した。ただし、前述の通り、電子比熱は金属の状態密度により決まり、合金の状態密度は金属種や合金比により大きく変わる。そこで本論文では、(I) 各金属の主たる単元素のみで構成された試料を想定した場合(すなわち、GdFeCo の遷移金属 FeCo の 87.5 at. % を占める鉄と AlTi の 90 at. % を占める Al を代表値として純金属の物性値から試算した場合)と、(II) バルク合金の計算値と組成比を重みづけして計算した場合(すなわち、実験値⁹⁾から予測される FeCo 合金の電子比熱係数 $\gamma = 4.1$ として計算した場合)の 2 つの単純化した試料モデルにより検討を進める。

電子温度、電子比熱を用いた電子系のエネルギー吸収・散逸に AOS が強く立脚するという考えに対し、電子と同じく熱伝導を担う格子系も想定した場合を比較する。AOS に関わるエネルギー散逸過程が、sub-ps ~ 数 ps のオーダーにおける電子系によるエネルギー分配のみならず、その後も大きく伝搬する格子系も含めたエネルギー分配(通常の熱統計で表現されるエネルギー分配)に立脚とすると、その温度は $T = E_{abs} / (\sum AC_i M_i)$ [K] (C_i : 比熱, M_i : 比重)とあらわされ、各金属における分配エネルギーは $E_{each} = AC_i M_i T$ [J]となる。

本論文では磁性層に隣接する材料に電子比熱の大小と比熱の大小の組み合わせが異なるような元素を選択している。これにより、4章で示唆した”AOS が主として局所熱力学的平衡としての電子温度にもとづいて、電子系の ps 程度のエネルギー散逸に強く依存する”という考えの真偽について検討を可能にした。以下に試料の単純化モデル(I), (II) に対し、①電子比熱にもとづく計算と②比熱にもとづく計算を示す。

まず各試料、各計算モデル(I)(II)における光強度分布は図 5-4 の様になる。

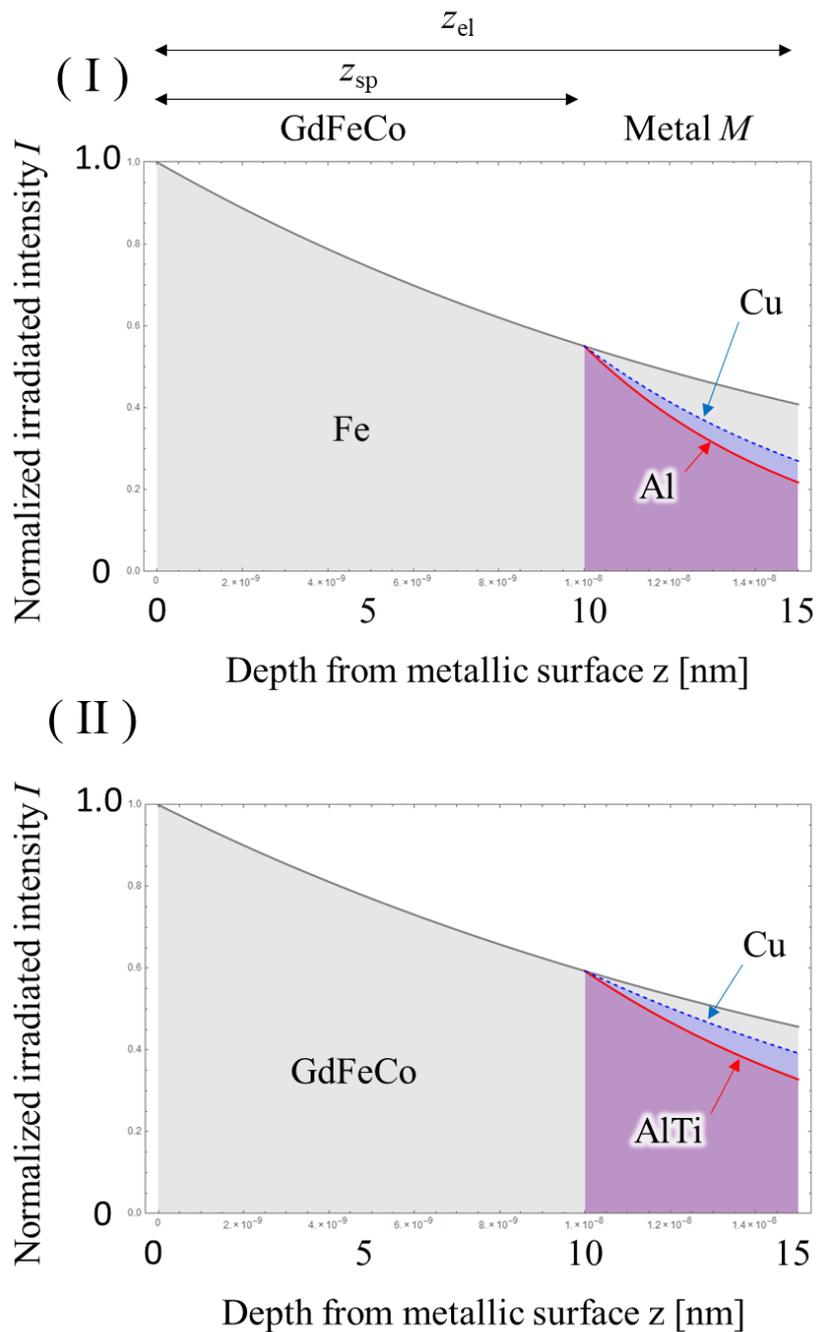


図 5-4 各計算モデル(I)(II)の各金属層における波長 800 nm の光強度分布

この光強度分布に一意に対応して電子系にエネルギーが吸収され、その後の散逸が超短時間における局所熱力学的平衡において電子比熱にもとづいて行われる場合の各金属層におけるエネルギー分配は、図 5-5 の様に計算される。

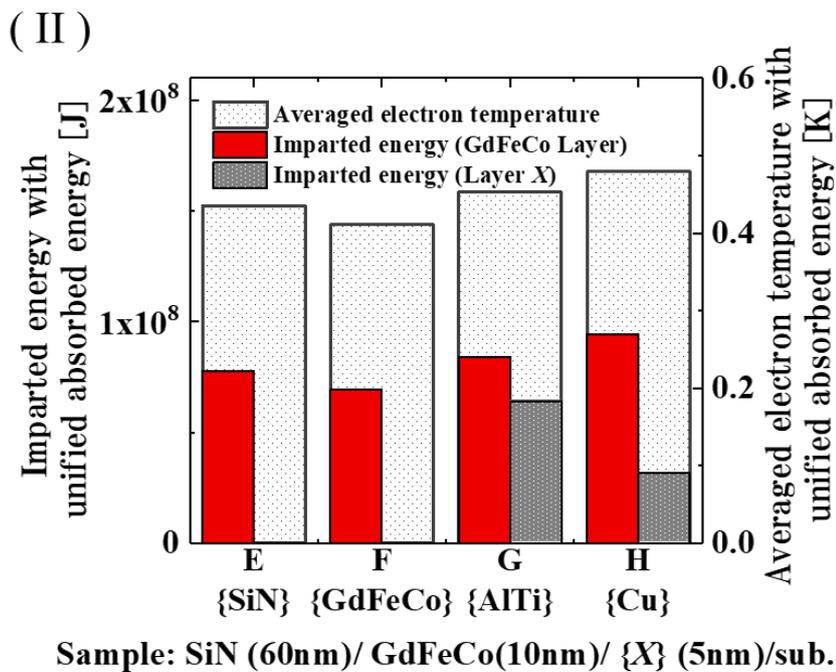
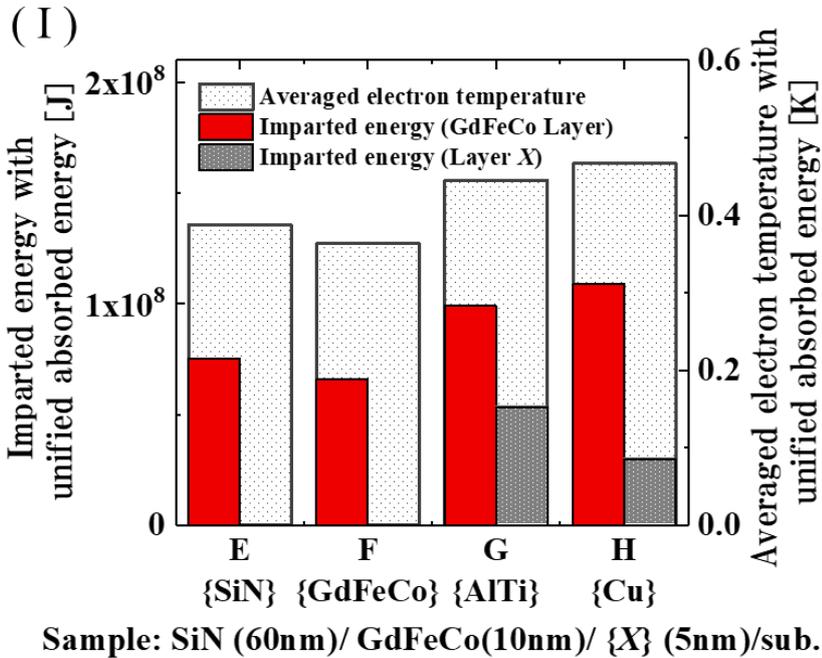


図 5-5 局所熱力学的平衡において全エネルギーが電子比熱に基づいて各層に分配された場合の計算結果

対して、より長い準平衡熱的散逸が比熱にもとづいて行われた場合、各金属層における分配された各エネルギー E_{layer} は図5-6のような傾向を持つと計算される。

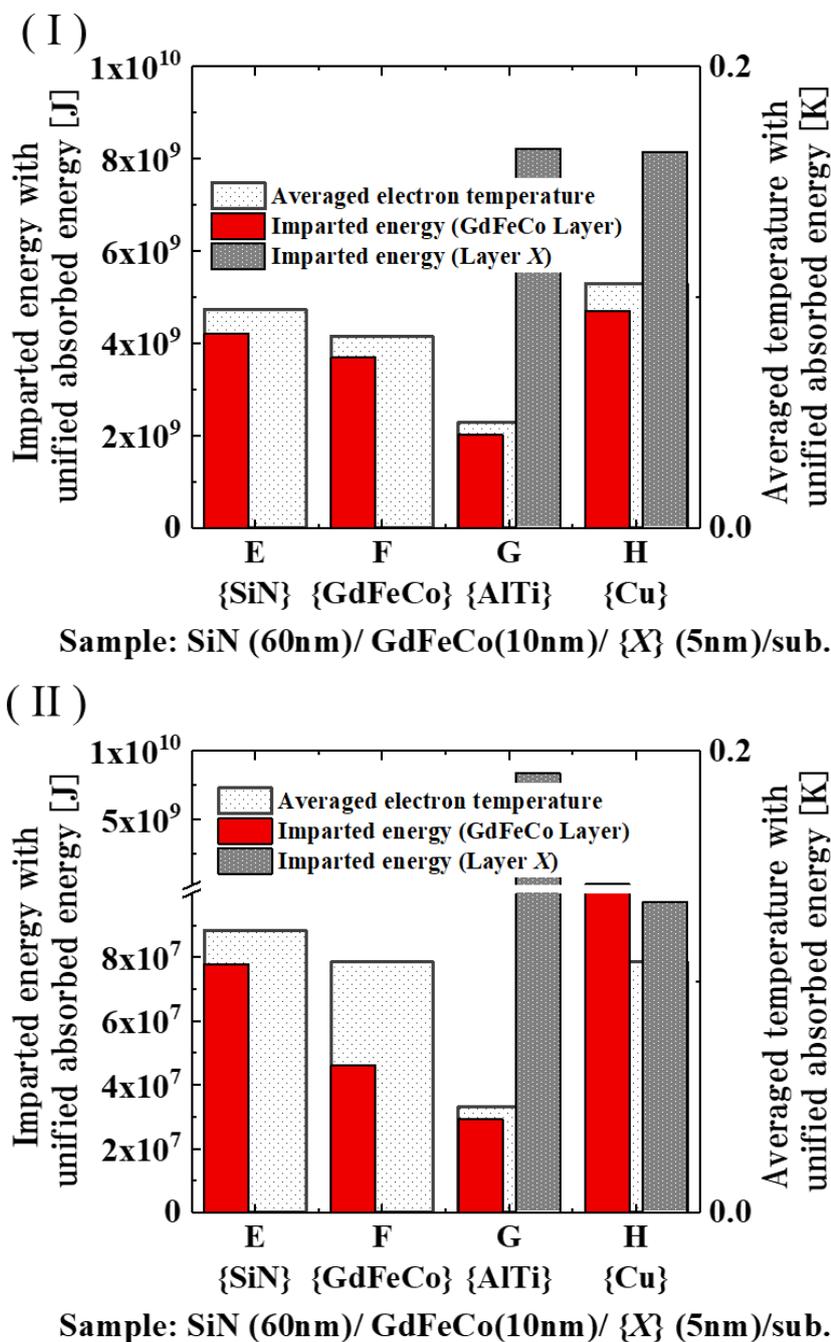


図5-6 熱力学的平衡において全エネルギーが比熱にもとづいて各層に分配された場合の計算結果

5-3 GdFeCo/Metal 試料群における超短時間局所平衡系エネルギー分配と比熱

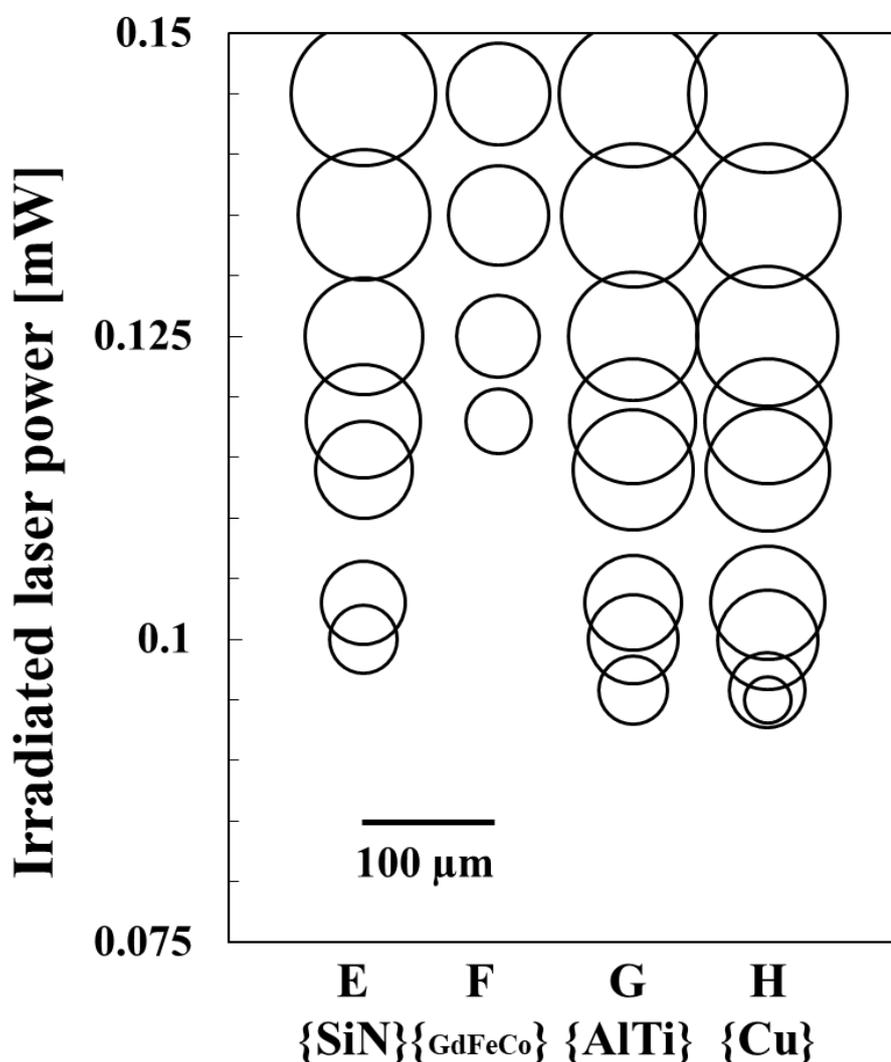
以上の計算結果から各比熱にもとづくエネルギー分配後、各試料群の GdFeCo の持つ単位膜厚当たりのエネルギー E_{GdFeCo} は比熱により大きく異なることが予測される。まず、電子比熱にもとづく場合 E_{GdFeCo} の大きさは $H \{Cu\} > G \{AlTi\} > H \{SiN\} > F \{GdFeCo\}$ となる。対して格子比熱を主とする体積比熱にもとづく場合、 $H \{Cu\} > E \{SiN\} > F \{GdFeCo\} > G \{AlTi\}$ となる。この様に光学的にほぼ同等のエネルギーを吸収しつつも、比熱にもとづくエネルギー再分配後の GdFeCo 層の有するエネルギーの大小関係が大きく異なる試料群に対し、全光型磁化反転による磁区形成は電子比熱にもとづく場合と異なると予想される。次に、これにより電子系もしくは格子系まで含めたエネルギー散逸が AOS の磁区形成に大きく寄与しうるか、またそのエネルギー分配は電子比熱もしくは比熱と相関があるかについて、実際に AOS を誘起・観察した結果を次節で述べる。

5-4 下地金属種の異なる GdFeCo/Metal 試料群における全光型磁化反転

(5-3) 節に示した比熱・電子比熱の組み合わせの大小が大きく異なる GdFeCo / Metal 試料群 : SiN(60 nm) / Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4} (10 nm) / { E : SiN, F : Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4}, G : Al₉₀Ti₁₀, H : Cu} (5 nm) / glass sub. を作製し、全光型磁化反転(AOS)の形成磁区を誘起・観察した。これまで同様、試料群に対し中心波長 800 nm パルス幅 90 fs (半値全幅)のガウシアンレーザー光を膜面側より照射することにより室温にて磁化反転を誘起し、形成磁区を偏光顕微鏡の磁気光学像にて観察した。結果を図 5-7 に、超短単一パルス光を各試料(横軸)に照射し形成される磁区サイズ(円面積)を各照射光強度毎(縦軸)に示す。

いずれの試料でも AOS 形成磁区サイズは照射光強度に一意に対応し、隣接層が $H \{Cu\} < G \{AlTi\} < E \{SiN\} < F \{GdFeCo\}$ の順に反転エネルギー密度閾値

が高くなる。すなわち、 $H \{Cu\} > G \{AlTi\} > E \{SiN\} > F \{GdFeCo\}$ の順で AOS を高効率に誘起していることを意味している。これは電子比熱にもとづく計算結果(図 5-5) の示す傾向と一致しており、電子系による膜厚方向へのエネルギー分配が AOS の励起に強く関わっていることを示している。また、これは AOS に関わる超短時間のエネルギー分配を、局所熱力学的平衡にもとづく電子系の



Sample: SiN(60 nm)/ GdFeCo(10 nm)/ Layer {X} / glass sub.

図 5-7 下地金属種の異なる GdFeCo/Metal 試料群における全光型磁化反転による形成磁区の照射強度依存性

5-4 下地金属種の異なる GdFeCo/Metal 試料群における全光型磁化反転

熱的拡散として捉えることができることを示している。

これまでに超短時間の非平衡温度散逸過程を表現した二温度モデルは各系間の温度散逸を各系の比熱にもとづく熱拡散方程式で表される。本検討により、AOS に関わる超短時間の空間的エネルギー散逸過程もまた二温度モデルで主に表現可能であることを示唆しており、層構成や元素により形成される ps 程度までの電子系の高温状態に AOS が強く立脚することを示した。

またこれは、超短時間の電子温度の高温状態の制御により AOS の励起効率を制御可能であることを意味している。すなわち工学的知見として、電子比熱の小さな金属材料を隣接することで金属層から磁性層にエネルギーを注入し、AOS のより高効率な励起、すなわち同一光スポットサイズにおいてより低い光照射エネルギーで誘起が可能であることを示したことになり、積層構造・電子比熱にもとづく材料選択により超短時間特有の磁化反転、AOS の誘起条件を制御可能であることを示した。

5-5 まとめ

本章では、非断熱的エネルギー散逸過程において電子系の「局所熱力学的平衡」にもとづくエネルギー分配と、その AOS への寄与を検討することを目的とし、電子系、電子-格子平衡系における熱特性の異なる隣接金属層を含む積層構造について、AOS の励起効率について検討を行った。対象試料群として、電子比熱・格子比熱の大小の組み合わせの異なる試料群：SiN(60 nm) / Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4} (10 nm) / { E : SiN, F : Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4}, G : Al₉₀Ti₁₀, H : Cu } (5 nm) / glass sub. を作製した。各試料における閾値強度の対応は、電子比熱にもとづく計算結果の示す傾向と一致しており、電子系による膜厚方向へのエネルギー拡散に AOS の励

起が強く立脚することを示した。また、その拡散は電子比熱にもとづく電子系の熱的拡散として捉えることができ、AOS 用材料作製指針の一つとして、電子比熱の小さな金属材料を隣接することでAOSのより低い光照射エネルギーでの誘起、すなわち高効率な励起を可能にすることを示した。

5-6 参考文献

- [1] 水谷 宇一郎, 金属電子論 上, 第2版, 内田老鶴圃 (1995)
- [2] 水谷 宇一郎, 金属電子論 下, 第2版, 内田老鶴圃 (1996)
- [3] M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, L. V. Tanatarov Sov. Phys. JETP, 4, 2 (1957)
- [4] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, T. L. Perel'man, Sov. Phys. JETP, 39, 2, 375 (1974)
- [5] J. Hohlfeld, S. S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias, Chem. Phys., 251, 1, 237-258 (2000)
- [6] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett., 76, 4250 (1996)
- [7] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, Nature Mater., 9, 259 (2010)
- [8] 日本金属学会編, 金属データブック, 改訂4版, 丸善出版 (2004)
- [9] C. H. Cheng, C. T. Wei, P. A. Beck, Phys. Rev., 120, 426 (1960)
- [10] L. Berger, Phys. Rev., 137, 1A (1965)
- [11] 田中宏志, 高山新司, 藤原毅夫, 日本応用磁気学会誌 (J. Mag. Soc. Jpn.), 15, 2 (1991)
- [12] H. Tanaka, S. Takayama, J. Appl. Phys., 70, 6577 (1991)

第 6 章 結論

本研究では、新たな超高速磁化制御原理として全光型磁化反転(AOS) 現象を対象とし、これまで未解明であった超短時間積層薄膜内エネルギー散逸過程に着目した研究を、理学・工学的観点から行った。対象とする GdFeCo は希土類-遷移金属系のフェリ磁性アモルファス合金である。超短パルス光照射後の超短時間のエネルギー散逸過程は非平衡・非断熱的で極めて難解な系であり、実験により検討を進める必要があった。元素・構造・膜厚の観点から系統的に異なる薄膜試料群をマグネトロンスパッタ法により作製し、これらの試料群に対し磁化計測、磁気・光学計測、時分解磁気・光学計測と反転形成磁区を観察・評価することで明らかにした研究成果を下記にまとめる。

第 3 章 フェリ磁性体の磁化補償点近傍における全光型磁化反転

第 3 章 では、AOS 現象が従来型の磁場駆動型磁化反転現象と原理的に異なり正味の磁化に依存しない特異な現象であることを実際に検証するために、室温磁化補償組成近傍の試料群を作製し、AOS について実験検討を行った。対象材料であるフェリ磁性体 GdFeCo は元素組成比・温度により希土類(RE), 遷移金属(TM)に由来する各副格子磁化およびその差である正味の磁化 M がそれぞれ変化し、磁化反転に要する外部磁場を表す保磁力も急峻に変化する。この磁化補償状態では正味の磁化 M が 0 となり“自己減磁界”、“漏洩磁界”、“外部磁場”を含む実効磁場による磁場駆動型磁化反転は困難となる。実際、磁化補償点近傍では、磁化反転に要する外部磁場を示す保磁力も急峻に変化していることを確

認している。

この様な磁場駆動の磁化反転に対し、AOS は、既存の検討において各副格子磁化間の角運動量遷移がその反転の要因と示唆されている。すなわち、磁化補償状態およびその近傍でも元素組成比は概ね変わらないためほぼ一様に磁化反転が誘起されると予想される。従って、磁化補償状態近傍で AOS を誘起・観察することで、磁場駆動型の磁化反転と異なる原理に根差すことを明瞭に示すことができると考えた。

実際に、室温にて磁化補償状態を示す組成比近傍の試料群を作製し、本試料群における AOS による形成磁区を比較し、また同一試料において磁化補償温度を含む AOS の温度依存性を観察比較した。結果として、磁化補償点近傍においてほぼ一様に AOS が誘起されることを確認し、AOS 現象が従来型の磁場駆動型磁化反転現象と大きく異なり、正味の磁化に依存しない磁化反転原理にもとづくことを示した。またこれにより補償点近傍の組成比試料により高安定に磁化情報を保存可能な磁気記録の実現の可能性を示した。

第4章 非断熱的エネルギー散逸過程に着目した全光型磁化反転

第4章では、副格子磁化間で角運動量遷移が強く行われると考えられる ps オーダーの非断熱的エネルギー散逸過程において、電子系・格子系によるエネルギー授受・散逸の AOS への寄与について各時間依存性を含み検討を行った。

まず、エネルギー散逸機構において電子系が律則する連続した金属層膜厚、格子系が律則する全多層膜厚が系統的に異なるような積層構造をもつ GdFeCo/SiN/AlTi 試料群を作製し、AOS を観察・評価した。AOS は超短パルス光により誘起される熱磁氣的核磁気形成とも異なる応答を示し、All-Optical Pump Probe 法による時分解磁気・光応答計測から示唆される超短パルス光の

エネルギー吸収特性、それにもとづく磁気システムの ps 程度の応答のみでは説明できないことを実験的に示した。そして、AOS が、光エネルギー吸収特性のみならず、その後の電子系の格子系との平衡化にもとづく ps 程度でのエネルギー散逸に依存することを示唆した。これは AOS が熱磁気記録などで従来用いられてきた平衡系熱力学で扱えず、電子系に着目した新たな非平衡エネルギー散逸の観点で取り扱う必要があることを示した。

次に、超短時間の電子系によるエネルギー散逸を系統的に変えるために磁性合金膜厚が光の侵入長前後の 10, 15, 20, 25, 30 nm と段階的に厚い試料群を作製し、同様の検討を行った。膜厚に対し AOS による形成磁区サイズは単調に小さくなり、この結果にもとづき光照射により形成された強度勾配にもとづいて電子系のエネルギー散逸が膜厚方向に行われ、AOS がこの散逸に強く依存することを示した。

以上の検討を踏まえ、積層構造を変えることで、AOS の発動効率を変えることができ、特に侵入長程度の膜厚においては、磁性合金層をより薄膜化するほど高効率に AOS を誘起できることを示した。

第 5 章 電子比熱に着目した超短時間エネルギー散逸と全光型磁化反転

第 5 章では、第 4 章で示唆した光照射後 ps 程度におけるエネルギー散逸に対し、電子温度および電子比熱に着目し、AOS 現象との相関について検討を行った。光吸収エネルギー分布と比熱により確立すると予想される過渡的電子系平衡状態としての電子温度と、電子温度の勾配にもとづくエネルギー散逸過程が電子比熱にもとづいて行われると予想した。この予想とともに、本検討に際して、電子比熱と比熱(電子比熱と格子比熱を考慮)の大小関係が異なる金属を隣接した GdFeCo/Metal 試料群を作製し、AOS 磁区を観察した。これにより、AOS が

過渡的断熱状態の指標としての電子温度・電子比熱にもとづくエネルギー分配に強く依存することを示した。また、この超短時間におけるエネルギー散逸に関して電子比熱にもとづく高効率化を提唱し、具体的に、電子比熱の小さな金属を隣接することでより高効率に AOS を誘起可能であることを示した。

以上の様に、新たな超高速磁化制御原理として AOS 現象を対象とし、これまで未解明であった超短時間積層薄膜内エネルギー散逸過程に着目した研究を、理学・工学的観点から行った。

理学的結論として、AOS が正味の磁化に依存しない高速な磁化反転現象であり、超短パルス光吸収後の ps 程度の非断熱的非平衡エネルギー散逸過程において、過渡的な電子系の温度平衡状態に律則する積層膜内でのエネルギー分配にもとづいて誘起されることを明らかにした。

さらに工学的結論として、磁化補償点近傍において高い情報保持能力を有しつつ、より膜厚の薄い磁性薄膜において、電子比熱の小さな金属層を隣接することで AOS を高効率に誘起可能であることを実証した。この工学的知見は、超短パルス光照射後のエネルギー散逸が、従来熱磁気記録で用いられてきた平衡系熱力学では扱えず、電子温度に立脚した非平衡系エネルギー散逸過程にもとづく。そして、これにより ps 程度の非平衡な非断熱的エネルギー散逸過程に特有の超短時間磁気物性に着目した初めての磁気記録媒体作製指針を実証と共に提示した。

謝辞

本研究と 9 年間の御指導とご鞭撻を賜りました 日本大学理工学部教授 塚本新先生に深く謝意を述べます。また本研究の遂行ならびに本論文の執筆にあたり、九州大学理学部准教授 佐藤琢哉先生、日本大学理工学部特任教授 山本寛先生、同理工学部教授 中川活二先生、同理工学部名誉教授 伊藤彰義先生に多大なるご温厚・ご指導を賜りました。心から謝意を示します。重ねて本研究の基礎となる電子工学・情報科学・物性物理をご教授いただいた日本大学理工学部電子工学科(旧電子情報工学科)の先生方に感謝いたします。また、7年間日々助力頂いた塚本研究室、伊藤研究室、中川・芦澤研究室の諸氏、特に 芦澤好人先生、Souliman El Moussaoui 博士、笠谷雄一博士、佐藤哲也博士(現 早稲田大学)、今里真之氏(現 古河機械金属株式会社)、二川康宏氏に感謝いたします。また同研究事務課、電子工学科、先端材料科学センターをはじめとするスタッフの方々に深く御礼申し上げます。

そして超短時間光・磁気物性や新規磁気記録技術に関わる本研究と共同研究の中で、Samsung 日本研究所の園部義明博士、京都大学 小野輝夫教授、Radboud University の Theo. Rasing 教授、Andrei Kirilyuk 教授、Alexey Kimel 教授、Max-Born-Institute Berlin & Helmholtz Center Berlin の Ilie Radu 博士、東北大学金属材料研究所 Joseph Barker 博士、また産業総合研究所 田丸慎吾博士、名古屋大学 加藤剛志教授、長岡技術科学大学 石橋隆幸教授、東京工業大学 中川茂樹教授、東北大学 高梨弘毅教授をはじめとする日本磁気学会、マグネティックス研究会、ナノスピン変換科学(Grant No.26103004)、私立大学戦略的学術基盤形成支援事業(Grant No.S1311020)の先生方、参画研究者の方々には大変貴重なご助言や機会を頂きましたことを感謝いたします。

本研究は、平成 25~29 年度 文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業「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」(Grant No.S1311020) に Research Assistant として、日本学術振興会特別研究員(DC2)として平成 28~29 年度日本学術振興会科研費「超短時間多層磁性薄膜内エネルギー散逸過程と全光型磁化反転機構の解明」(Grant No.16J01232)、分担所属学生として平成 26~30 年度文部科学省科学研究費補助金 新学術領域研究(研究領域提案型)「ナノスピン変換科学」(A03 班)(Grant No.26103004)、平成 21~25 年度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」から助成いただき、遂行いたしました。本論をもって謝意を示します。

関連発表一覧

(平成 30 年 1 月 18 日 既刊行, 既発表分)

* 学術論文・著書

< 全光型磁化反転(AOS) に関して >

- 1) **H. Yoshikawa**, S. Kogure, S. Toriumi, T. Sato, A. Tsukamoto, A. Itoh, “Ultrafast heat pulse magnetization switching near compensation condition in GdFeCo”, J. Magn. Soc. Jpn., 38, 3-2, 139-142 (2014)
- 2) **吉川大貴**, 塚本新, 伊藤彰義, “全光型超短熱パルス誘起磁化反転の GdFeCo 副格子磁化依存性”, 信学技報, 114, 140, MR2014-10, 11-15 (2015)
- 3) A. Tsukamoto, S. Kogure, **H. Yoshikawa**, T. Sato, A. Itoh, “Contribution of Magnetic Circular Dichroism in All-Optical Light Helicity-Dependent Magnetic Switching”, Ultrafast Magnetism I, Springer, pp. 334-336 (2014)
- 4) **H. Yoshikawa**, S. El Moussaoui, S. Terashita, R. Ueda, A. Tsukamoto, “The magnetic layer thickness dependency of all-optical magnetization switching in GdFeCo thin films” , Jpn. J. Appl. Phys., 55, 7S3 (2016)
- 5) **吉川大貴**, Souliman El Moussaoui, 寺下進之佑, 塚本新, “電子比熱に着目した金属多層膜化による全光型磁化反転の高効率励起”, 電学マグネティックス研資, 116(516), MAG-17-29, 9-14, (2017)

< 上記以外の関連論文 >

- 6) H. Mano, **H. Yoshikawa**, H. Hashiba, Y. Ashizawa, A. Tsukamoto, Y. Sasaki, S. Saito, M. Takahashi, S. Ohnuki and K. Nakagawa, “Thermally Assisted Magnetic Recording using Plasmon Antenna with Ultra Short Laser Pulse”, J. Magn. Soc. Jpn., 39, 192-195 (2015)

- 7) T. Okuno, K-J. Kim, T. Tono, S. Kim, T. Moriyama, **H. Yoshikawa**, A. Tsukamoto and T. Ono, “Temperature dependence of magnetoresistance in GdFeCo/Pt heterostructure”, Appl. Phys. Express, 9, 7 (2016)
- 8) W. S. Ham, S. Kim, D-H Kim, K-J Kim, T. Okuno, **H. Yoshikawa**, A. Tsukamoto, T. Moriyama, and T. Ono, “Temperature dependence of spin-orbit effective fields in Pt/GdFeCo bilayers”, Appl. Phys. Lett., 110, 242405 (2017)
- 9) 二川康宏, **吉川大貴**, 笠谷雄一, 田中万裕, S. El Moussaoui, 塚本新, “フェリ磁性 GdFeCo 静・動磁気特性への界面近傍磁気不均一構造改質による寄与”, 電学マグネティックス研資, MAG-17-150, 57-62 (2017)

* 口頭発表

- 1) A. Tsukamoto, S. Kogure, **H. Yoshikawa**, T. Sato, and A. Itoh, “Contribution of Magnetic Circular Dichroism in Helicity-Dependent All-Optical Magnetization Switching”, JEMS 2013, 358, ロドス, ギリシャ (2013)
- 2) A. Tsukamoto, S. Kogure, **H. Yoshikawa**, T. Sato, and A. Itoh, “Contribution of Magnetic Circular Dichroism in All-Optical Light Helicity-Dependent Magnetic Switching”, International Conference UMC 2013, Strasbourg, France (2013)
- 3) **H. Yoshikawa**, S. Kogure, T. Sato, A. Tsukamoto, A. Itoh, “ULTRAFAST HEAT PULSE MAGNETIZATION SWITCHING NEAR COMPENSATION COMPOSITION IN GdFeCo”, Magnetism and Optics Research International Symposium 2013, Omiya, Japan (2013)

- 4) 吉川大貴, 塚本 新, 伊藤彰義, “全光型超短熱パルス誘起磁化反転の GdFeCo 副格子磁化依存性”, 電子情報通信学会 MMS、IEEE Mag. Soc. Jpn 共催 磁気記録・情報ストレージ (MRIS) 研究会, 大岡山, 東京 (2014)
- 5) 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, 神奈川 (2014)
- 6) 眞野敬史, 吉川大貴, 芦澤好人, 塚本新, 佐々木有三, 斉藤伸, 高橋研, 大貫進一郎, 中川活二, “超短パルスレーザーによる局所プラズモン効果を用いた熱アシスト磁気記録”, 第 38 回日本磁気学会学術講演会, 日吉 (2014)
- 7) 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 (2014)
- 8) H. Mano, H. Yoshikawa, Y. Ashizawa, A. Tsukamoto, Y. Sasaki, S. Saito, M. Takahashi, S. Ohnuki and K. Nakagawa, “Thermally Assisted Magnetic Recording Applying Localized Plasmon Effect with Ultra Short Laser Pulse”, ICAUMS2014 (The 3rd International Conference of Asian Union of Magnetism Societies), Haikou, China (2014)
- 9) 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, AD-05, Honolulu, Hawaii (2014)
- 10) 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, Honolulu, Hawaii (2014)

- 11) 塚本新, 佐藤哲也, 吉川大貴, “多層膜におけるエネルギー散逸および全光型磁化反転の層構成依存性”, 新学術領域ナノスピントニクス変換科学 平成 26 年度スピントニクス変換年次報告会, O-8, 桂, 京都 (2015)
- 12) 吉川大貴, 佐藤哲也, 塚本新, “全光型磁化反転形成磁区の GdFeCo 薄膜隣接層構成依存性”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 東海大, 神奈川 (2015)
- 13) 吉川大貴, 寺下進之佑, 植田涼平, S. EL Moussaoui, 佐藤哲也, 塚本新, “全光型磁化反転の磁性層膜厚依存性”, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 東山, 名古屋 (2015)
- 14) S. El Moussaoui, H. Yoshikawa, Tetsuya Sato, A. Tsukamoto, “Optically Induced Demagnetization in Gd₂₃Fe_{77-x}Co_x”, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 10pD_10, 東山, 名古屋 (2015)
- 15) 寺下進之佑, 吉川大貴, 佐藤哲也, 塚本新, “誘電体中間層を有する GdFeCo 二層膜における全光型磁化反転現象”, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 10pD_11, 東山, 名古屋 (2015)
- 16) 植田涼平, 吉川大貴, 塚本新, “希土類遷移金属 GdFeCo フェリ磁性薄膜における磁気静特性及び磁化動特性の膜厚依存性”, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 10pD_13, 東山, 名古屋 (2015)
- 17) 佐藤哲也, 塚本新, 吉川大貴, 若林敬造, 渡邊昭廣, “Gd / FeCo 超格子膜における磁化ダイナミクスと磁気異方性の相関”, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 10pE_10, 東山, 名古屋 (2015)

- 18) **H. Yoshikawa**, A. Tsukamoto, “Ultrafast energy diffusivity dependency of all-optical magnetization switching in multi-layer structured GdFeCo thin films”, 20th International Conference on Magnetism , Barcelona, Spain (2015)
- 19) **H. Yoshikawa**, S. Terashita, R. Ueda, S. E. Moussaoui, and A. Tsukamoto, “THE MAGNETIC LAYER THICKNESS DEPENDENCY OF ALL-OPTICAL MAGNETIZATION SWITCHING IN GdFeCo THIN FILMS”, Magnetism and Optics Research International Symposium 2015, Penang, Malaysia (2015)
- 20) S. E. Moussaoui, **H. Yoshikawa**, T. Sato, A. Tsukamoto, “Ultrafast Demagnetization in Gd₂₃Fe_{77-x}Cox”, Magnetism and Optics Research International Symposium 2015, Mo-P-03, Penang, Malaysia (2015)
- 21) R. Ueda, **H. Yoshikawa**, T. Sato, A. Tsukamoto, “LARGE THICKNESS DEPENDENCY OF STATIC AND DYNAMIC MAGNETIC PROPERTIES IN FERRIMAGNETIC GdFeCo THIN FILMS”, Magnetism and Optics Research International Symposium 2015, Mo-P-06, Penang, Malaysia (2015)
- 22) **H. Yoshikawa**, S. Terashita, R. Ueda, S. E. Moussaoui, and A. Tsukamoto, “Magnetic/Metallic Thickness Dependency of All-Optical Magnetization Switching in Multilayered GdFeCo Thin Films “, The Materials Research Society of Japan, Yokohama, Japan (2015)
- 23) R. Ueda, **H. Yoshikawa**, T. Sato, A. Tsukamoto, “Thickness dependency of Static and Dynamic Magnetic Properties in GdFeCo Ferrimagnet with Anti-Parallel Coupled Sub-lattice Magnetization”, The Materials Research Society of Japan, A1-P8-019, Yokohama, Japan (2015)

- 24) **H. Yoshikawa**, S. El Moussaoui, S. Terashita, R. Ueda and A. Tsukamoto, “GdFeCo and metallic layer thickness dependency of ultrashort pulsed laser induced All-Optical magnetization Switching”, 新学術領域ナノスピ
ン変換科学 平成 27 年度スピン変換年次報告会, 片平, 仙台 (2016)
- 25) A. Tsukamoto, **H. Yoshikawa**, S. Terashita, “Layer selective All-Optical magnetization switching in GdFeCo double layer film and nanoscale confinement with nano-rod antenna”, 新学術領域ナノスピ
ン変換科学 平成 27 年度スピン変換年次報告会, PS-25, 片平, 仙台 (2016)
- 26) **吉川大貴**, Souliman El Moussaoui, 寺下進之佑, 植田涼平, 塚本新, “全光型磁化反転の GdFeCo 層隣接 3d 遷移金属依存性”, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 金沢大学, 金沢 (2016)
- 27) S. El Moussaoui, **H. Yoshikawa**, T. Sato, A. Tsukamoto, “Influence of transition metal sublattice in Gd₂₃(Fe_{1-x}Cox)₇₇ amorphous alloys for the laser induced magnetization reversal”, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 06aE-4, 金沢大学, 金沢 (2016)
- 28) 二川康宏, **吉川大貴**, 植田涼平, 田中万裕, 塚本新, “高密度ナノ磁性微粒子上連続磁性膜磁気緩和特性の増大検討”, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 06aE-5, 金沢大学, 金沢 (2016)
- 30) 笠谷雄一, **吉川大貴**, 塚本新, “希土類-遷移金属合金フェリ磁性体の電流磁気効果”, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 08aB-3, 金沢大学, 金沢 (2016)
- 31) **H. Yoshikawa**, S. El Moussaoui, S. Terashita, R. Ueda, A. Tsukamoto, “The non-local energy dissipation in All-Optical magnetization Switching of GdFeCo thin films”, 4th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies, Tainan, Taiwan (2016)

- 32) S. Terashita, H. Yoshikawa, A. Tsukamo, “All-Optical magnetization Switching on multi level GdFeCo magnetic double layered film”, 4th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies, PG-09, Tainan, Taiwan (2016)
- 33) 奥野堯也, Kim Kab-Jin, 東野隆之, Kim Sanghoon, 吉川大貴, 塚本新, 森山貴広, 小野輝男, “フェリ磁性体 GdFeCo/Pt の磁気抵抗効果の温度依存性”, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 13pPSA, 金沢大学, 金沢 (2016)
- 34) H. Yoshikawa, S. El Moussaoui, A. Tsukamoto, “All - optical magnetization switching in GdFeCo stacked on different metallic layers”, International workshop on nano-spin conversion science & quantum spin dynamics, Hongo, The University of Tokyo (2016)
- 35) A. Tsukamoto, Y. Sonobe, H. Yoshikawa, “Tc controlled TbFe/GdFeCo hybrid thermo-magnetic structure for small switching field and high thermal stability”, 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, HH-06, New Orleans, U.S.A. (2016)
- 36) Y. Futakawa, R. Ueda, H. Yoshikawa, M. Tanaka and A. Tsukamoto, “Magnetization dynamics of exchange coupled GdFeCo thin layer / FePt isolated particle”, The Materials Research Society of Japan, A2-P-19-027, 横浜 (2016)
- 37) 吉川大貴, Souliman El Moussaoui, 寺下進之佑, 塚本新, “電子比熱に着目した金属多層膜化による全光型磁化反転の高効率励起”, 電気学会 マグネティックス研究会, 名古屋大 (2017)

- 38) W. S. Ham, S. Kim, K. –J. Kim, T. Okuno, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto, T. Moriyama, T. Ono, “Temperature dependence of current-induced effective fields in Pt/GdFeCo”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 14p-P10-32, 横浜 (2017)
- 39) 二川 康宏, 吉川 大貴, 植田 涼平, 田中 万裕, 塚本 新, “GdFeCo 層/FePt 微粒子群 微小不均一界面構造による磁気緩和増大検討”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 14p-P10-90, 横浜 (2017)
- 40) H. Yoshikawa, S. E. Moussaoui, Y. Kasatani, A. Tsukamoto, “ALL-OPTICAL MAGNETIZATION SWITCHING ON GdFeCo/METAL FILMS TRIGGERED BY FEMTOSECOND PULSED LASER”, The 28th Magnetic Recording Conference, Tsukuba, Japan (2017)
- 41) Y. Kasatani, H. Yoshikawa, Y. Futakawa and A. Tsukamoto, “Spin-Orbit Torque in Rare Earth-Transition Metal Ferrimagnets Heterostructures”, 平成 29 年度スピン変換研究会, P-45, 大阪大学, 大阪 (2017)
- 42) S. El Moussaoui, H. Yoshikawa, T. Sato, A. Tsukamoto, “Influence of the TM on the magnetic properties of GdFeCo thin films for ultrafast magnetic recording”, 平成 29 年度スピン変換研究会, P-50, 大阪大学, 大阪 (2017)
- 43) 吉川大貴, S. E. El Moussaoui, 笠谷雄一, 二川康宏, 塚本 新, “Pt 下地層による GdFeCo 全光型磁化反転閾値の低減効果”, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 九州大 (2017)
- 44) 二川康宏, S. E. Moussaoui, 吉川大貴, 笠谷雄一, 塚本新, “GdFeCo フェリ磁性体界面近傍磁気不均一構造の検討”, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 21pB-5, 九州大学, 福岡 (2017)

- 45) 飯坂岳, 吉川大貴, 二川康宏, 塚本新, “磁性層の実効的光吸収率増大による全光型磁化反転の高効率化”, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 22pC-9, 九州大学, 福岡 (2017)
- 46) 二川康宏, 吉川大貴, 笠谷雄一, 田中万裕, S. El Moussaoui, 塚本新, “フェリ磁性 GdFeCo 静・動磁気特性への界面近傍磁気不均一構造改質による寄与”, 電気学会マグネティックス研究会, テーマ「ナノスケール構造磁性体, 光/熱・スピンドバイス, 磁性材料, 磁気応用一般」, MAG-17-150, 東北大学, 仙台 (2017)
- 47) 西村幸恵, Duck-Ho Kim, 平田雄翔, 奥野堯也, 二川康宏, 吉川大貴, 塚本新, 小野輝男, “フェリ磁性体 GdFeCo を用いた磁場駆動磁壁ダイナミクスにおける磁気特性とデピニング磁場の相関”, 第 22 回半導体スピン工学の基礎と応用 PASPS-22, P-42, 大阪大学, 大阪 (2017)
- 48) H. Yoshikawa, Y. Futakawa, Y. Kasatani, S. El Moussaoui, A. Tsukamoto, “ALL-OPTICAL MAGNETIZATION SWITCHING IN GdFeCo/Pt”, Magnetism and Optics Research International Symposium 2018, Mo-P-19, NewYork, U.S.A. (2018)
- 49) S. El Moussaoui, H. Yoshikawa, T. Sato, A. Tsukamoto, “INFLUENCE OF THE TRANSITION METAL ON THE MAGNETIC PROPERTIES OF GDFECO THIN FILMS FOR ULTRAFAST MAGNETIC RECORDING”, Magnetism and Optics Research International Symposium 2018, Mo-P-17, NewYork, U.S.A. (2018)

- 50) Y. Futakawa, **H. Yoshikawa**, Y. Kasatani, S. El Moussaoui, A. Tsukamoto,
“MODIFICATION OF MAGNETIC INHOMOGENIOUS STRUCTURE
NEAR THE INTERFACES IN AMORPHOUS GdFeCo
FERRIMAGNETIC THIN FILM”,
Magnetics and Optics Research International Symposium 2018, Mo-P-20,
NewYork, U.S.A. (2018)
- 51) Y. Kasatani, **H. Yoshikawa**, Y. Futakawa, A. Tsukamoto,
“SPIN-ORBIT TORQUE IN 4 F-METAL/RE-TM FERRIMAGNET
HETEROSTRUCTURES”,
Magnetics and Optics Research International Symposium 2018, Tu-P-08,
NewYork, U.S.A. (2018)

以上