

TbFe/SiO 組成変調膜の磁気力一効果

Magneto-Optical Kerr Effect in TbFe/SiO Compositionally Modulated Films

佐藤龍二・森下忠隆[†]・斎藤信雄・梶浦正子・佐藤勝昭*・貴田弘之*^{††}・千葉圭一*

日本放送協会放送技術研究所, 東京都世田谷区砧 1-10-11 (☎157)

*東京農工大学工学部, 東京都小金井市中町 2-24-16 (☎184)

現所属: [†]超電導工学研究所, ^{††}竹中工務店R. Sato, T. Morishita[†], N. Saito, M. Kajiura, K. Sato*, H. Kida*^{††} and K. Chiba

NHK Science and Technical Res. Lab., 10-11, Kinuta 1-chome, Setagaya-ku, Tokyo 157

*Faculty of Tech., Tokyo Univ. of A & T., 24-16, Naka-machi 2-chome, Koganei 184

Present address: [†]Superconductivity Research Laboratory, ^{††}Takenaka Corporation

When a TbFe layer is so thin that the incident light transmits through several TbFe layers in a TbFe/SiO compositionally modulated film, a multi-reflection occurs at each interface. Kerr rotation angle can be strongly enhanced by the interference of these reflected lights. Kerr rotation angle runs up to 12 degrees at a wavelength of light of 6328Å. A large enhancement of Kerr rotation angle is attained at an arbitrary wavelength of visible light by selecting the thickness of each layer. The perpendicular magnetic anisotropy is dominant in a TbFe/SiO compositionally modulated film even when the thickness of a TbFe layer is 39Å because of magnetostriction at interfaces. In a compositionally modulated film, optical constants of a magnetic thin film, but not of a coating layer, can be tuned to the antireflection without quenching the perpendicular magnetic anisotropy.

1. 目的および背景

希土類金属および遷移金属から成る非晶質合金薄膜は、膜面と垂直な方向に磁化容易軸をもつ磁気異方性(以後、垂直磁気異方性と呼ぶ)を示す。我々は、これまで、垂直磁気異方性の起源を探るために、希土類-遷移金属非晶質合金薄膜の磁性について調べてきた。それらの中で、結晶材料と同じく、非晶質合金においても、希土類の持つ1イオン異方性が磁気異方性に反映され、磁気異方性定数(K_u)の大きな材料を得るには、希土類としてTbを用いるのがもっとも有効であることを明らかにした¹⁾。垂直磁気異方性を示し、かつ大きな K_u が得られる重希土類-遷移金属合金の場合、6000Å以上の波長領域でのKerr回転角(θ_k)は0.3 deg程度と小さい。光磁気記録材料としての応用を考えた場合、 K_u , θ_k ともに大きな材料が必要である。出発点となる材料は、二つに分けられる。すなわち、1) K_u は小さいが θ_k は大きい材料、

および、2) K_u は大きい θ_k は小さい材料。1)に属している、1 deg以上の θ_k を示すものとして、PtMnSbやウラン化合物²⁾などが知られている。しかし、PtMnSbで重希土類-遷移金属合金なみの K_u を得るのはむずかしく、ウラン化合物の場合、大きな θ_k を得るには低温状態が必要という欠点がある。我々は、2)に分類される重希土類-遷移金属合金の θ_k を大きくするため、FeとCoの合金の採用、基板バイアス電圧などの作製条件の最適化などを試みたが、 θ_k は0.5 deg程度が限界であった³⁾。

材料本来の値ではないが、媒体の実効的な θ_k を室温のまま大きくする方法として、誘電体層、および反射面を含む層構造によるエンハンスメントが知られている^{4),5)}。我々は、磁性材料の θ_k をエンハンスすることを目的とし、TbFeとSiOが交互に積層された組成変調膜を作製し、磁気光学効果と膜の構造の関係を調べた。また、もう一つの目的は、組成変調構造(compositionally modulated structure; CMS)と膜の磁気特性との関係を調べることである。薄い磁性膜が数多く積層されているので、層厚を薄くするにつれて、磁性層の単位膜厚当たりの界面密度が増し、界面における磁歪効果が、膜全体の磁気異方性に強く影響してくる。また、磁性層間の距離は、各層間の磁気的相互作用(例えば、双極子-双極子相互作用)に影響を及ぼす。これらを明らかにすることは、 K_u の制御のためにも重要である。

2. 実験

2.1 試料作製および試料の構造

磁性層として、蒸着法で作製しても容易に垂直磁気異方性が得られるTbFe合金を、採用した。非磁性層としては、可視域において吸収が少なく、屈折率(n)が比較的高い(~ 2) SiOを用いたので、Kerr効果のエンハンスメントが期待出来る。

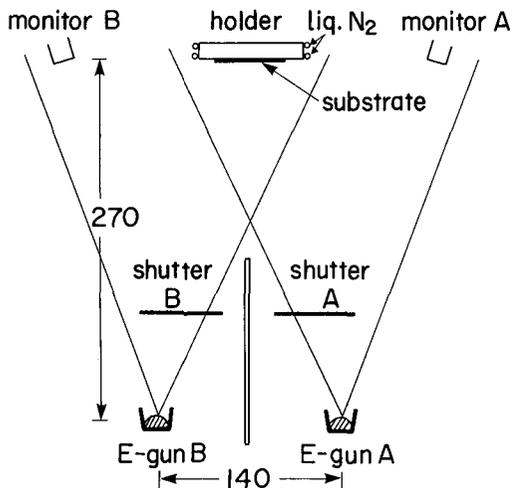


Fig. 1 Apparatus for sample preparation.

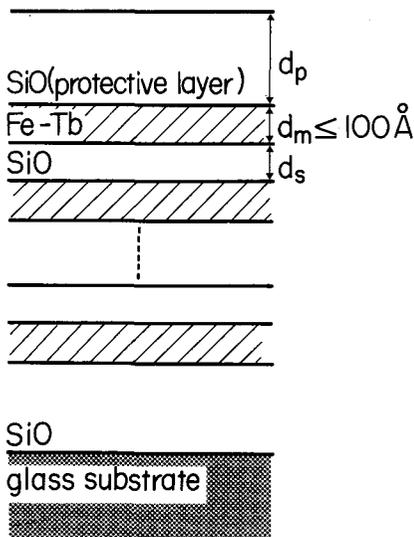


Fig. 2 Structure of TbFe/SiO CMF.

Table 1 Conditions of sample preparation

residual air pressure		8×10^{-8} Torr
pressure during evaporation		2×10^{-7} Torr
substrate temperature		80 K
deposition rate	Tb, Fe	0.3 Å/s
	SiO	0.8 Å/s

試料作製装置を Fig. 1 に示す。試料は、電子銃加熱を用いた真空蒸着法でガラス基板上に作製した。TbFe 合金層は、A, B 二つの電子銃で Tb と Fe を同時に加熱し、共蒸着法あるいは、短い繰返し周期 (20Å 以下) の交互

蒸着法で作製する。交互蒸着法を用いたのは、組成比制御を容易にするためである。繰返し周期が十分短いとき、交互蒸着法で作製した膜の微視的な構造は、共蒸着法で作られた一様合金膜とほとんど同じである。TbFe 合金層を蒸着した後、電子銃 B のビーム位置に SiO をいれた蒸着源を移動させ、シャッター A を閉じたままシャッター B を開けて SiO 層を蒸着する。この繰返しで、TbFe/SiO 組成変調膜を作製する。水晶振動子を用いた膜厚計によって蒸着速度および膜厚を監視し、その出力信号でシャッター動作を制御した。製膜条件を Table 1 にまとめる。

試料の構造を Fig. 2 に示す。TbFe 層 1 層の厚さ (d_m) は、入射光を透過させるために、100Å 以下とした。SiO 層 1 層の厚さ (d_s) は、50~150Å の間で変化させた。TbFe 層の数 (N_m) は 10 である。試料表面および基板と最下部の TbFe 層との間に保護層として、500~750Å の厚さ (d_p) の SiO を蒸着した。

2.2 測定

各層内の構造 (結晶性) および層構造 (CMS) は、高角度および低角度領域の X 線回折測定で評価した。磁気特性は、薄膜用の高感度磁気トルク計および試料振動型磁力計で調べた。 θ_k の波長依存性は、円偏光変調法⁶⁾により、4000~8000Å の波長域で、4 kOe の磁場を加えた状態で膜面側から測定した。6328Å の波長で、最大 10 kOe の磁場を加えて得られた Kerr ヒステリシスループから、ゼロ磁場での θ_k を決定し、飽和磁場での値の較正に用いた。

3. 結果および考察

3.1 層内構造および組成変調構造

組成比制御を容易にするため、TbFe 層を短周期 (20 Å 以下) の交互蒸着法で作製したが、垂直磁気異方性を得るには、層内で一様な非晶質状態であることが望ましい。スパッタ法で作製した Tb/Fe 組成変調膜の場合、組成変調周期が 5Å 程度でも CMS が存在することが報告されている⁷⁾。しかし、我々が作製した TbFe/SiO 組成変調膜の TbFe 層は、Tb と Fe の交互蒸着で作製した場合でも、繰返し周期が 20Å より短いときは、結晶相や CMS を反映する X 線回折パターンは観測されなかったため、一様合金に近い状態と考えられる。

垂直磁気異方性を示す組成変調膜における、CMS と磁気光学効果の関係を調べるためには、できるだけ平坦な界面を持った組成変調膜であることが望ましい。Fig. 3 に TbFe/SiO 組成変調膜の、低角度領域における典型的な X 線回折パターンを示す。CMS を反映する周期的

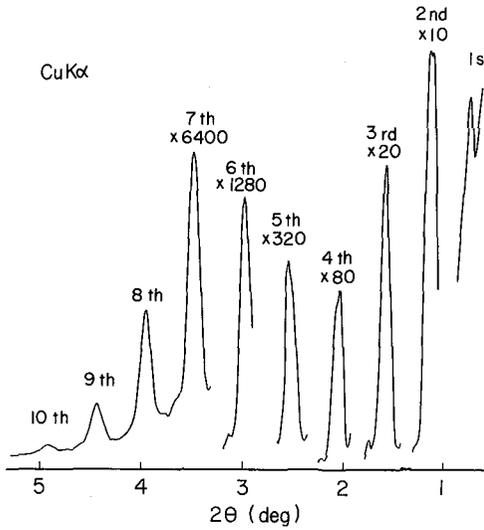


Fig. 3 X-ray diffraction pattern reflecting CMS for the number of TbFe layers (N_m) is 4, the thickness of a TbFe layer (d_m) is 70\AA and the thickness of SiO layer (d_s) is 100\AA .

なピークが、10次まで存在する。したがって、組成プロファイルは正弦波ではなく、矩形波に近いと考えられる。

3.2 磁気異方性

Fig. 4(a)に、磁気トルク波形を示す。TbFe層1層の厚さが 39\AA でも、垂直磁気異方性が支配的な膜となっている。各磁性層が薄くても垂直磁気異方性が得られるということは、何層かの磁性層を含む膜で θ_k のエンハンスメントを狙う場合、有利である。Fig. 4(b)に、 K_u のFeの組成比(C_{Fe})に対する依存性を示す。TbFe/SiO組成変調膜の K_u は、 $C_{Fe}=69\text{at}\%$ では $1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ であり、同じ組成比をもつ一様合金膜の値、 $2.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ より大きくなっている。我々が行ったTbFe/SiO組成変調膜の磁気特性についての報告⁹⁾で、TbFe層とSiO層の界面における磁歪効果によって垂直磁気異方性が誘起されることを述べた。磁性層間の相互作用も磁気異方性に影響を及ぼすと考えられるが、これについては、まだ定量的に評価していない。

3.3 磁気カー効果

磁気トルク測定で垂直磁気異方性が確認された試料について、 θ_k を測定した。Fig. 5に、波長 6328\AA に対する θ_k の測定結果を示す。 $d_p=525\text{\AA}$ 、 $d_s=100\text{\AA}$ 、 $N_m=10$ とした場合、 d_m が減少するにつれて θ_k の絶対値は増加し、 d_m が 41\AA のときには 12 deg に達している。反射率(R)は、図中に破線で示すように、2%以下であり、 d_m の

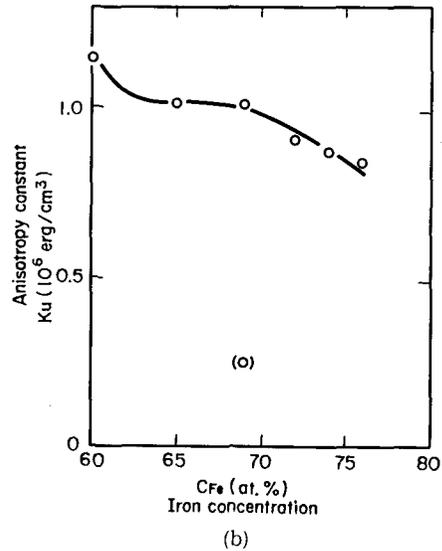
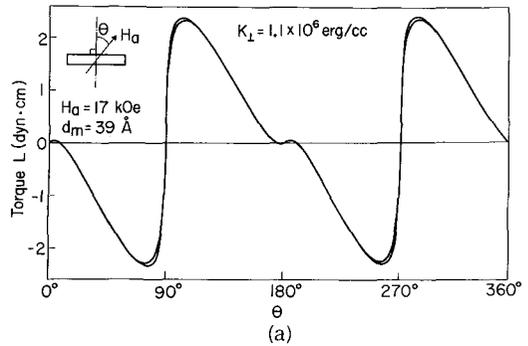


Fig. 4 (a) Magnetic torque curve traced in an applied field of 17 kOe. (b) The dependence of K_u on the iron concentration (C_{Fe}), where the parenthesis means a homogeneous alloy film.

減少と共に、 θ_k とは逆に、増加している。 θ_k の変化と R の変化の関係から、干渉効果による θ_k の増加であることがわかる。Fig. 2に示すように、この膜では、磁性層と誘電体層との界面が膜厚方向に多数存在している。したがって、各界面で多重反射した光の干渉効果のために θ_k が大きくエンハンスされている。 $d_m=45\text{\AA}$ 付近で θ_k の符号が反転しており、これに対応して、図中に示すKerrヒステリシスループの“極性”が変化する。一様合金膜では、希土類と遷移金属の組成比が補償組成を横切るときに、磁化の極小化および保磁力の発散が起き、Kerrヒステリシスループの極性が変化する。しかし、TbFe/SiO組成変調膜では、“極性”反転の前後で、保磁力の発散も磁化の極小化も観測されなかった。したがっ

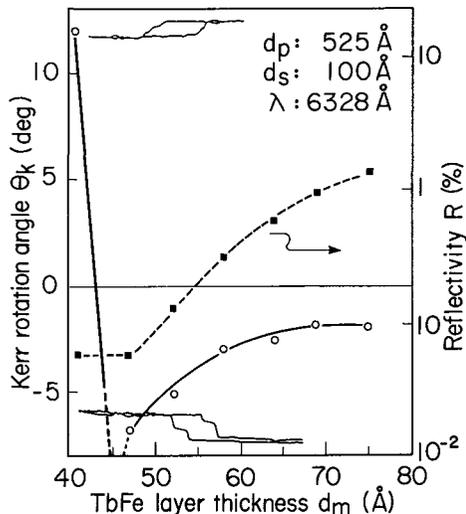


Fig. 5 Observed θ_k (solid line) and reflectivity R (broken line) of TbFe/SiO CMF plotted against d_m . Kerr hysteresis loops for $d_m=41\text{\AA}$ and 52\AA are shown.

て、干渉効果のために、Kerr ヒステリシスループの見掛け上の“極性”が変化し、 θ_k の符号が変化しているものと考えられる。 θ_k の符号およびループの形状は、CMS や光の波長に依存して複雑に変化するが、これについては、別途報告している⁹⁾。

各層を構成する材料の光学定数は波長依存性を持つ。また、反射光および透過光の位相シフト量は波長および膜厚に依存する。したがって、TbFe/SiO 組成変調膜の θ_k は光の波長に依存し、 θ_k の波長依存性は CMS に依存する。Fig. 6 に θ_k の波長依存性の実験結果を示す。Fig. 6(a) は、他の構造パラメータを一定にして d_s を変えた場合である。 d_s が増すにつれて鋭い波長依存性となり、ピーク値は大きくなる。Fig. 6(b) に示すように、ピーク位置は、 d_p が増すにつれて長波長側にシフトする。これらの結果から、各構造パラメータ (d_p , d_m , d_s) を適当に調節することによって、TbFe/SiO 組成変調膜は、可視域の任意の波長において大きな θ_k を示し得ることがわかる。

各界面での反射光および透過光の干渉効果が考慮された、誘電体多層膜の等価的な屈折率を計算する方法は、よく知られている。この方法を、磁性層と誘電体を含む多層構造膜に摘要することで、膜全体を等価的な屈折率を持つ一様な媒体とみなしたときの θ_k を計算出来る⁵⁾。この方法が組成変調膜においても有効であることは、既に Fe/Cu 組成変調膜で示されている¹⁰⁾。同じ方法によって、TbFe 層の厚さを 100\AA 、SiO 層の厚さを 300\AA

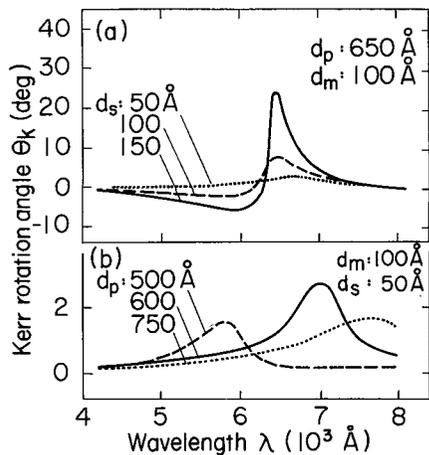


Fig. 6 Observed wavelength dependence of θ_k . Varied parameters are (a) d_s and (b) the thickness of protective layer (d_p).

とし、保護層の厚さをパラメータとして θ_k の波長依存性を計算した。結果を Fig. 7 に示す。光学定数として、SiO については Philipp の値¹⁾を用いた。TbFe 層については、数 10\AA 程度の厚さにした場合の密度や微視的構造上の問題はあがるが、ほぼ TbFe 合金(バルク)の光学定数が使えるものとして、Allen らの値¹²⁾を用いた。計算によれば、保護層の厚さの $4n$ 倍付近の波長にピークがくる。保護層として SiO を用いた場合、 n は可視域ではほぼ 2 であり、ピーク波長は保護層の厚さの約 10 倍となる。 d_s の増加とともに θ_k の波長依存性は鋭くなり、この結果は、Fig. 6(a) の実験結果とよく一致している。Fig. 7 に示すように、 $d_s=300\text{\AA}$ のときのピークは非常に鋭く、 θ_k のピーク値およびピーク波長近傍 ($\sim 6500\text{\AA}$) での θ_k は保護層の厚さに敏感に依存する。

磁気 Kerr 効果は、磁性媒体表面で光が反射するとき起きる磁気光学効果であるが、実際には媒体の表面からある深さまで光は侵入する。また、組成変調膜に入射した光は各磁性層を透過する際にわずかず吸収され、数多くの磁性層が存在しても、ある程度以上深い所にある磁性層には光が届かないこともあり得る。組成変調膜において、磁気光学効果に有効に寄与する TbFe 層の数、および TbFe 合金における光の侵入深さを評価するために、TbFe/SiO 組成変調膜における θ_k の N_m 依存性を計算した。Fig. 8 に、 $d_p=650\text{\AA}$ 、 $d_s=100\text{\AA}$ とし、TbFe 層厚をパラメータとしたときの、波長 6328\AA の光に対する θ_k の N_m 依存性を示す。 θ_k は、 N_m とともに増加するが、全 TbFe 層厚、すなわち $d_m \times N_m$ が 500\AA 以上になると飽和する。このことは、TbFe 合金の 6328

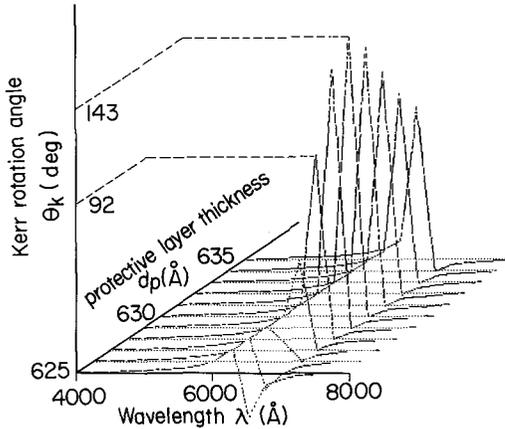


Fig. 7 Calculated wavelength dependence of θ_k . $d_m = 100 \text{ \AA}$, $d_s = 300 \text{ \AA}$ and d_p is varied.

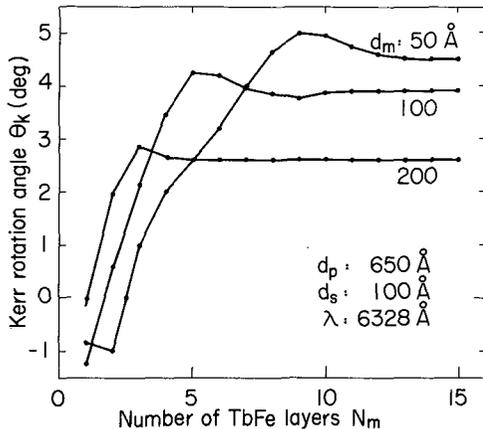


Fig. 8 Calculated N_m dependence of θ_k at 6328 \AA for three values of d_m : 50, 100 and 200 \AA when $d_p = 650 \text{ \AA}$ and $d_s = 100 \text{ \AA}$.

\AA の光に対する侵入深さが 500 \AA 程度であることを示す。 d_m が小さいほど、 θ_k の飽和値は大きくなっている。したがって、 d_p , d_s が Fig. 8 のように設定されているとき、全 TbFe 層厚が 500 \AA ならば、 6328 \AA の光に対しては、各 TbFe 層を薄くして数多く積層した方が、 θ_k のエンハンスメントに関しては有利である。

最後に、 TbFe/SiO 組成変調膜における θ_k のエンハンスメントの特徴について述べる。従来型のエンハンス膜同様、 TbFe/SiO 組成変調膜でも、原理的には、磁性膜と誘電体層との界面で多重反射する光の干渉効果が用いられている。エンハンスメント効果に対する試料表面の保護層の寄与と、その下の周期構造の寄与を分離すると、組成変調膜の特徴がよくわかる。具体的には、 Fig. 5

で 12 deg という θ_k を与える CMS から保護層を取り去った膜および Fig. 5 の CMS と同じ厚さの保護層を持つ一様合金膜について、波長 6328 \AA における θ_k を計算した。一様合金膜の厚さは、全 TbFe 層厚と同じにしてある。結果は、それぞれ、 0.3 deg および 0.4 deg であり、いずれも、 Fig. 5 の値より 1 けた以上小さい。保護層のない、 TbFe 層と SiO 層からなる周期的な構造それ自体は、大きなエンハンス効果を持たない。しかし、保護層厚および全磁性層厚は変わらなくても、磁性膜を、一様合金膜から、磁性層と誘電体層からなる積層構造に変えることで、 θ_k は大きくエンハンスされる。したがってこの結果から、組成変調膜では磁性膜の光学定数が等価的に変化していると見ることが出来る。従来型のエンハンス膜は、磁性膜の上（あるいは磁性膜と基板との間）に積層する誘電体の光学定数と厚さをパラメータとして、エンハンスメント効果が調整されるので、誘電体の屈折率が大きいほど、大きなエンハンスメント効果が得られる。しかし、現実には、利用出来る誘電体の屈折率には限界があるので、このような場合、複数の誘電体を用いた多層構造によって、屈折率が調整される。我々が今回報告した組成変調膜を用いた方法は、1 種類の誘電体を用いるだけで、垂直磁気異方性を保持したまま、磁性媒体の等価的な光学定数を広範囲に変えることが出来る点が特徴である。 Fig. 7 の計算結果は、屈折率が 2 程度の誘電体を用いた場合でも、組成変調膜では無反射に近い状態が得られ、 θ_k が大きくエンハンスされることを示している。

4. まとめ

TbFe/SiO 組成変調膜では、 TbFe 層 1 層の厚さが 40 \AA 以下でも垂直磁気異方性が支配的な膜が得られる。磁気異方性定数 K_u は、 TbFe 層と同じ組成比の一様合金膜より大きい。このことは、組成変調構造を用いて θ_k のエンハンスメントをめざす場合、有利である。

TbFe/SiO 組成変調膜では、膜厚方向に数多く存在する界面で反射する光の干渉効果のために、 θ_k がエンハンスされる。また、組成変調構造によって磁性膜の等価的な屈折率を自由に調整出来るため、2 程度の屈折率を持つ誘電体を用いた場合でも θ_k は非常に大きくなる。

干渉効果を用いている方法の常として反射率は低いが、室温において、容易に手にはいる誘電体を用いて、可視域の任意の波長で 10 deg 以上の θ_k を得る方法を確立した。

組成変調膜の研究の重要性について早くから洞察さ

れ、ご指導いただきました対馬国郎教授に感謝いたします。東京大学物性研究所の安藤恒也先生には、具体的な研究を進めるに当たり、特に理論面からのご議論、ご指導をいただいたことに感謝いたします。東邦大学物理学科の大村直樹君、日本大学大学院・理工学研究科の古川憲志君には、精力的に試料作製および測定に取り組んでもらったことを感謝します。

文 献

- 1) R. Sato, N. Saito and Y. Togami: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **24**, L266 (1985).
- 2) J. Schoenes and W. Reim: *J. Magn. Magn. Mat.*, **54-57**, 1371 (1986).
- 3) Y. Togami, R. Sato, N. Saito and M. Shibayama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **24**, 106 (1985).
- 4) K. Egashira and T. Yamada: *J. Appl. Phys.*, **45**, 3643 (1974).
- 5) K. Ohta, A. Takahashi, T. Deguchi, T. Hyuga, S. Kobayashi and H. Yamada: Proc. Optical Data Storage, USA, 1983, SPIE 382, 252 (1983).
- 6) K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2403 (1981).
- 7) N. Sato: *J. Appl. Phys.*, **59**, 2514 (1986).
- 8) R. Sato, N. Saito, T. Morishita and M. Kajiura: Proceedings of JIMIS-5: Non-Equilibrium Solid Phases of Metals and Alloys, Supplement to Trans. JIM, **29**, 321 (1988).
- 9) N. Saito, T. Morishita, R. Sato and M. Kajiura: to be published in Proceedings of MRS International Meetings of Advanced Materials, Tokyo (1988).
- 10) K. Sato, H. Kida and T. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27**, L237 (1988).
- 11) H. R. Philipp, in Handbook of Optical Constants of Solids, edited by E. D. Palik, Academic Press, New York, 765 (1985).
- 12) R. Allen and G. A. N. Connell: *J. Appl. Phys.*, **53**, 2353 (1982).

1988年12月9日受理, 1989年3月15日採録