

# Pt-Ni 系合金および人工格子の磁気光学スペクトル

Magneto-optical Spectra in Pt-Ni Alloys and Multilayers

池亀 弘・登坂保弘・佐藤勝昭・続山浩二\*・戸上雄司\*

東京農工大学工学部, 東京都小金井市中町 2-24-16 (☎184)

\*三井石油化学工業(株), 千葉県袖ヶ浦市長浦 580-32 (☎299-02)

H. Ikekame, Y. Tosaka, K. Sato, K. Tsuzukiyama\* and Y. Togami\*

Faculty of Tech., Tokyo Univ. of Agric. and Tech., 2-24-16 Nakacho, Koganei 184

\*Mitsui Petrochemical Ind. Ltd., 580-32 Nagaura, Sodegaura 299-02

Pt-Fe, Pt-Co, and Pt-NiCo alloys and multilayers were prepared on an  $\text{SiO}_2$  substrate by the DC magnetron sputtering method. The reflectivity spectra and magneto-optical Kerr spectra were measured in these specimens, and the diagonal and off-diagonal elements of conductivity tensor were deduced from them. The results of this work are as follows: (1) The peak energy position of magneto-optical Kerr rotation spectra showed a systematic shift to lower energies as the transition metal was varied from Fe to Ni, both in multilayers and alloys. (2) Simulation using the above-determined conductivity tensor of alloys revealed that alloy layers existed at the interface between Pt and transition metal layers in all the Pt-based multilayers investigated. (3) Obvious effects of plasma-enhancement were confirmed in the short-wavelength magneto-optical Kerr spectra in the Pt-based alloys.

**Key words:** Pt-Fe, Pt-Co, Pt-NiCo, alloy, multilayers, reflectivity, optical constant, Kerr rotation,

Kerr ellipticity, interfacial alloy, plasma enhancement

## 1. はじめに

我々は、これまで Pt-Fe 系, Pt-Co 系の合金および人工格子について、それらの磁気光学効果の物理的起源について議論してきた<sup>1,2)</sup>。Pt-Fe, Pt-Co においては、Kerr 回転角のピークは、それぞれ 4.3 eV および 3.9 eV にあり、この傾向から Ni を用いた場合にはピーク位置は、さらに低エネルギー側へシフトするものと予想し、Pt-Ni 系合金および人工格子において同様の実験を行ったので報告する。報告の内容は以下のとおりである。

- (1) 合金および人工格子の磁気光学スペクトル
- (2) 界面合金層を仮定したときの人工格子の磁気光効果のシミュレーション
- (3) 合金における磁気光学効果のプラズマ・エンハンスメント

**Table 1** Layer thicknesses (designed), total film thickness (designed), period (measured), composition (analyzed), total thickness (measured), and layer thicknesses (estimated from composition) of multilayers. Parameters for alloy films are also listed.

Designed values		Measured values			Estimated ratio
Pt/TM (Å)(Å)	thickness (Å)	Period (Å)	composition (at%)	thickness (Å)	Pt/TM (Å)(Å)
Pt <sub>60</sub> (10)/(Ni <sub>80</sub> Co <sub>20</sub> ) <sub>40</sub> (5)	2000	17.8	Pt <sub>54</sub> (Ni <sub>78</sub> Co <sub>22</sub> ) <sub>46</sub>	2500	Pt(8.0)/NiCo(9.8)
Pt <sub>60</sub> (10)/Co <sub>40</sub> (5)	2000	14.0	Pt <sub>60</sub> . <sub>5</sub> Co <sub>39</sub> . <sub>5</sub>	2015	Pt(9.5)/Co(4.5)
Pt <sub>60</sub> (10)/Fe <sub>40</sub> (5)	2000	14.6	Pt <sub>66</sub> . <sub>98</sub> Fe <sub>33</sub> . <sub>02</sub>	2007	Pt(10.5)/Fe(4.1)
Pt <sub>60</sub> (Ni <sub>80</sub> Co <sub>20</sub> ) <sub>40</sub>	2000	—	Pt <sub>57</sub> (Ni <sub>79</sub> Co <sub>21</sub> ) <sub>43</sub>	2300	—
Pt <sub>60</sub> Co <sub>40</sub>	2000	—	Pt <sub>60</sub> . <sub>2</sub> Co <sub>39</sub> . <sub>8</sub>	1915	—
Pt <sub>60</sub> Fe <sub>40</sub>	2000	—	Pt <sub>58</sub> . <sub>3</sub> Fe <sub>41</sub> . <sub>7</sub>	1760	—

## 2. 実験

実験には、Table 1 に示すような Pt-Fe, Pt-Co, Pt-NiCo 系合金膜および人工格子膜を用いた。ここで Pt-Ni としなかったのはキュリー点が室温以下になってしまったため、Co を多少加えた Pt-NiCo を用いた。それぞれの試料は SiO<sub>2</sub> 基板上に DC マグネットロジンスパッタ法によって作製した。組成および膜厚は蛍光 X 線分析法により測定し、組成変調周期は X 線回折法により測定した。人工格子 1 周期における各元素の膜厚は、膜の組成から見積もった値であり、人工格子に界面合金層を全く形成しないことを仮定している。

これらの試料について円偏光変調法<sup>3)</sup>により 1.24~5.90 eV の範囲の磁気光学スペクトルを測定した。装置の詳細は別途報告する<sup>4)</sup>。印加磁界は 1 T で、Kerr ヒステリシスループ測定により磁気飽和を確認している。ま

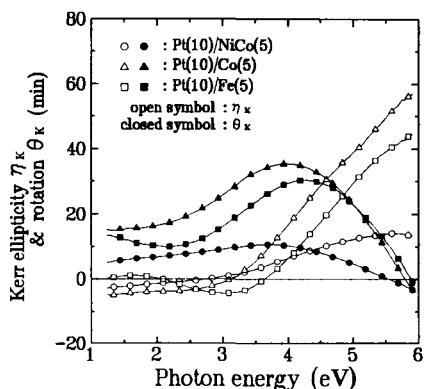


Fig. 1 Spectra of Kerr rotation  $\theta_K$  and Kerr ellipticity  $\eta_K$  in Pt-based multilayers.

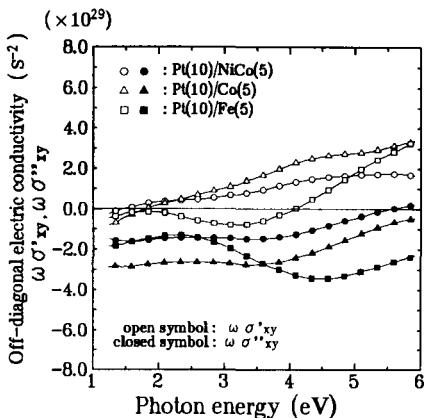


Fig. 2 Spectra of the off-diagonal element of conductivity  $\sigma_{xy}$  in Pt-based multilayers.

た反射スペクトルは日立 U-3410 分光光度計により 0.48~6.70 eV の範囲で測定した。さらに Pt-Co, Pt-Fe についても、東京大学物性研究所放射光施設において測定した 2.5~25 eV のスペクトルを接続した。これを Kramers-Kronig 変換することにより光学定数を決定している。変換に当たり分光エリプソメーター（日本分光 PME-30S: 1.55~3.10 eV または SOPRA ES-4G: 1.5~5.0 eV）のデータを用いた。以上の実験により導電率テンソルの対角成分および非対角成分を導いた。

また、仮想光学定数法<sup>5)</sup>を用い、測定で得られた磁気光学スペクトルを光学シミュレーションによって解析した。その一つは Pt 系人工格子の磁気光学効果の界面合金層厚依存性であり、もう一つは Pt 系合金の磁気光学効果のプラズマエンハンスメントである。

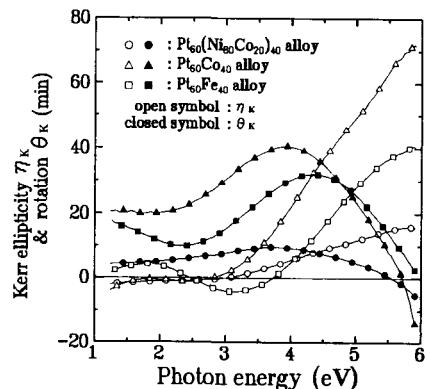


Fig. 3 Spectra of Kerr rotation  $\theta_K$  and Kerr ellipticity  $\eta_K$  in Pt-based alloys.

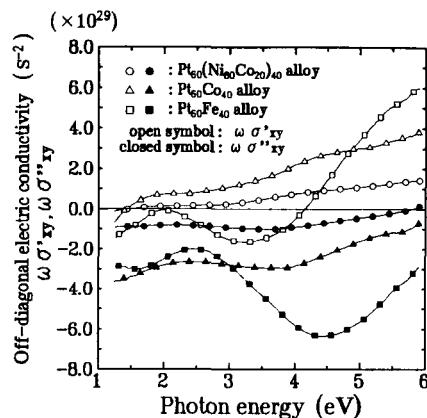


Fig. 4 Spectra of the off-diagonal element of conductivity  $\sigma_{xy}$  in Pt-based alloys.

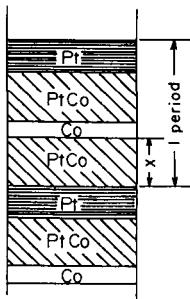


Fig. 5 A structure assumed for simulation in a Pt/Co multilayer with an interfacial alloy layer.

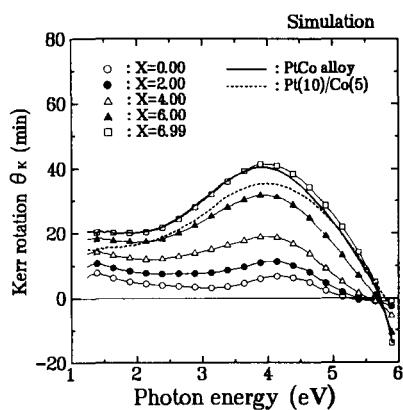


Fig. 6 Simulated Kerr rotation spectra in the Pt/Co multilayer, assuming an interfacial alloy with thickness  $X$ .

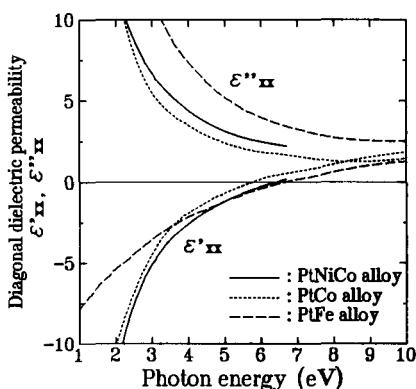


Fig. 7 Spectra of the diagonal element of dielectric permeability  $\epsilon_{xx}$  in Pt-based alloys deduced from reflectivity spectra.

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 人工格子、合金の磁気光学スペクトル

Pt 系人工格子および合金の磁気光学スペクトルをそれぞれ Fig. 1, Fig. 2 に、導電率テンソルの非対角成分をそれぞれ Fig. 3, Fig. 4 に示す。Pt-Fe 系や Pt-Co 系と比較して、Pt/NiCo, Pt-NiCo では、 $\theta_K, \eta_K$  の値が小さくなっているが、Kerr 回転角のピーク位置は予想通り低エネルギー側へシフトしていることがわかった。導電率テンソルの非対角成分でみても磁気光学的構造が Pt-Fe → Pt-Co → Pt-NiCo の順に低エネルギー側へ移行していくようすがわかる。

#### 3.2 合金層を考慮した Kerr 効果のシミュレーション

Pt 系人工格子では界面の合金層の議論が重要であり、この合金層の存在が多層膜の磁気光学効果の起源とされている。我々は第一近似として界面の合金層に Fig. 5 のようなモデルを考え、仮想光学定数法により磁気光学スペクトルの界面合金層依存性をシミュレートした。Fig. 6 は、Pt/Co について人工格子膜内の組成を変えずに界面合金層（Table 1 に示した合金組成を仮定）の厚みをパラメータにとってシミュレートした結果である。界面合金層が全く存在しないモデルの Kerr 回転角は小さな値しか示さず、しかもスペクトル全体の傾向を説明することすらできない。しかし、界面合金層の厚みを順次増していくと、人工格子の磁気光学スペクトルを定量的にも定性的にも説明することができる。本実験に用いた Pt/Fe では 6.4 Å, Pt/Co では 6.5 Å, Pt/NiCo では 8.5 Å 程度の alloying を生じていることが概算できた。

#### 3.3 Pt 系合金の Kerr 効果のプラズマ・エンハンスメント

Fig. 2 において Pt 系合金の磁気光学スペクトルは 6 eV 附近に顕著な分散型を示すことがわかる。それにもかかわらず、このエネルギー附近では導電率テンソルの非対角成分  $a_{xy}$  にあまり顕著な変化がみられない。我々は Kerr 効果の 6 eV 付近の構造がプラズマ端におけるエンハンスマント効果によって生じていると考え解析を行ってみた。

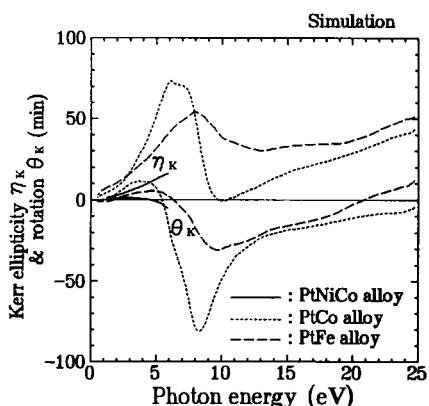
一般に磁気 Kerr 効果は次式によって表される<sup>6)</sup>。

$$\theta_K + i\eta_K = \frac{\epsilon_{xy}}{(1 - \epsilon_{xx})\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (1)$$

従って  $\theta_K, \eta_K$  の大きさは  $\epsilon_{xy}$  だけでなく  $\epsilon_{xx}$  にも依存する。プラズマ共鳴のエネルギーにおいては  $\epsilon'_{xx} = 0$  となるためエンハンスマントを示す可能性がある。ただし分子の  $\epsilon_{xy}$  の絶対値がある程度大きくなければ、このエンハ

**Table 2** Values of the off-diagonal conductivity assumed as constant over the energy range of the simulation

	$\sigma_{xy'}$	$\sigma_{xy''}$
PtNiCo alloy	$1.5 \times 10^{13}$	$-1.9 \times 10^{13}$
PtCo alloy	$4.0 \times 10^{13}$	$-5.0 \times 10^{13}$
PtFe alloy	$7.0 \times 10^{13}$	$-9.0 \times 10^{13}$



**Fig. 8** Simulated magneto-optical spectra, assuming a constant  $\alpha_{xy}$  when calculating Eq. (1) for Pt-based alloys.

メント効果は顕著に現れない。

反射スペクトルの解析から得られた誘電率テンソルの対角成分のスペクトルをFig. 7に示す。プラズマ共鳴エネルギーは遷移金属の如何に関わらず6~7 eV付近にあることがわかる。このことは杉本らの測定と一致する<sup>7)</sup>。

プラズマ共鳴によるエンハンスメント効果の検証のため、磁気光学効果の起源とされている導電率テンソルの非対角成分  $\alpha_{xy}$  ( $\epsilon_{xy}$  は  $4\pi i \alpha_{xy}/\omega$  で与えられる) を一定値に固定し (Table 2),  $\epsilon_{xx}$  のみの分光特性を考慮して、(1)式により磁気光学スペクトルをシミュレートした。Fig. 8 は、この結果を示したものである。4 eV 付近の正のピーク値は実験に比し小さいが、これは Pt 5d の偏極の効果による  $\alpha_{xy}$  の増大を入れなければ完全には説明できないことを表すと考えられる。しかし、対角成分の効果のみでも 6 eV 付近に Kerr 効果の大きな構造を生じることが今回の研究により明らかになった。また、 $\theta_K$ ,  $\eta_K$  のピークは Pt-Fe → Pt-Co → Pt-NiCo の順に低エネルギー側へシフトしているようが見られる。エンハンス

メントの程度は Pt-Co が最も大きいが、これはプラズマ端における誘電率テンソルの対角成分の虚部  $\epsilon_{xx}''$  の大きさに起因していると考えられる。Pt-NiCo にも 6.5 eV 付近にプラズマ端がありエンハンスメントが認められるが、元来  $\alpha_{xy}$  が小さいため、その効果は大きくはない。

#### 4. 結 論

本論文では、Pt-Fe, Pt-Co, Pt-NiCo の合金および人工格子の光学スペクトル、そして磁気光学スペクトルについて報告した。以下に結果をまとめる。

(1) Pt 系人工格子では Pt-Fe → Pt-Co → Pt-NiCo の順に低エネルギー側へ磁気光学的構造がシフトする。

(2) Pt 系人工格子の磁気光学スペクトルの形状および大きさは適当な界面合金層を仮定することにより説明することができ、合金層の厚みが 6~8 Å と推定された。

(3) Pt 系合金の Kerr スペクトルは 6 eV 付近に顕著な分散型のスペクトルを示すが、この付近には導電率テンソルの非対角成分  $\alpha_{xy}$  には大きな変化は見られなかった。

(4) Pt 系合金の 6 eV 付近の Kerr スペクトルにおいてプラズマ・エンハンスメントがはっきりと確認された。

今後 Pt-NiCo についても Pt-Co, Pt-Fe と同様に放射光を用いた反射測定によって光学定数を求め、プラズマ・エンハンスメントの解析を行う予定である。

**謝 辞** 本研究の遂行に対し、放射光による反射率測定に御協力いただいた東京大学物性研究所の藤沢正美氏に感謝する。本研究の一部は、文部省科学研究費重点領域研究「金属人工格子」の助成を受けて行っている。

#### 文 献

- 1) K. Sato, H. Hongu, K. Tsuzukiyama, J. Watanabe and Y. Togami: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **15**, (Suppl. S1), 29 (1991).
- 2) K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, J. Watanabe, K. Tsuzukiyama, Y. Togami, M. Fujisawa and T. Fukazawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**, 3603 (1992).
- 3) K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2403 (1981).
- 4) K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, Y. Tosaka, M. Watanabe, K. Takanashi and H. Fujimori: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, No. 2 (1993) 印刷中。
- 5) 佐藤勝昭, 貴田弘之: 日本応用磁気学会誌, **12**, 329 (1988).
- 6) H. Feil and C. Haas: *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 65 (1987).
- 7) 杉本利夫: 学位論文, p. 102 (1992) (未公表).

1992年11月18日受理, 1993年2月2日採録