

硬X線MCDによるナノ磁性体の分析

広島大学大学院理学研究科 圓山 裕



アウトライン

(1) 硬X線磁気円二色性 (XMCD) の特長

(2) Pt *L*-吸収端XMCD

TM-Pt合金系 (規則合金)

(3) ナノ・サイズ磁性体

(CoCr)Pt 垂直磁化膜

(東北大学電通研 村岡裕明教授)

FePtナノ粒子

(広島大学工学部 奥山喜久夫教授)

(4) まとめ 課題と近未来



SPring-8 BL39XU

硬X線磁気円二色性 (XMCD) の特長

★ 第3世代放射光 (SPring-8)

低エミッタンス, 高輝度, 偏光特性, 高エネルギー

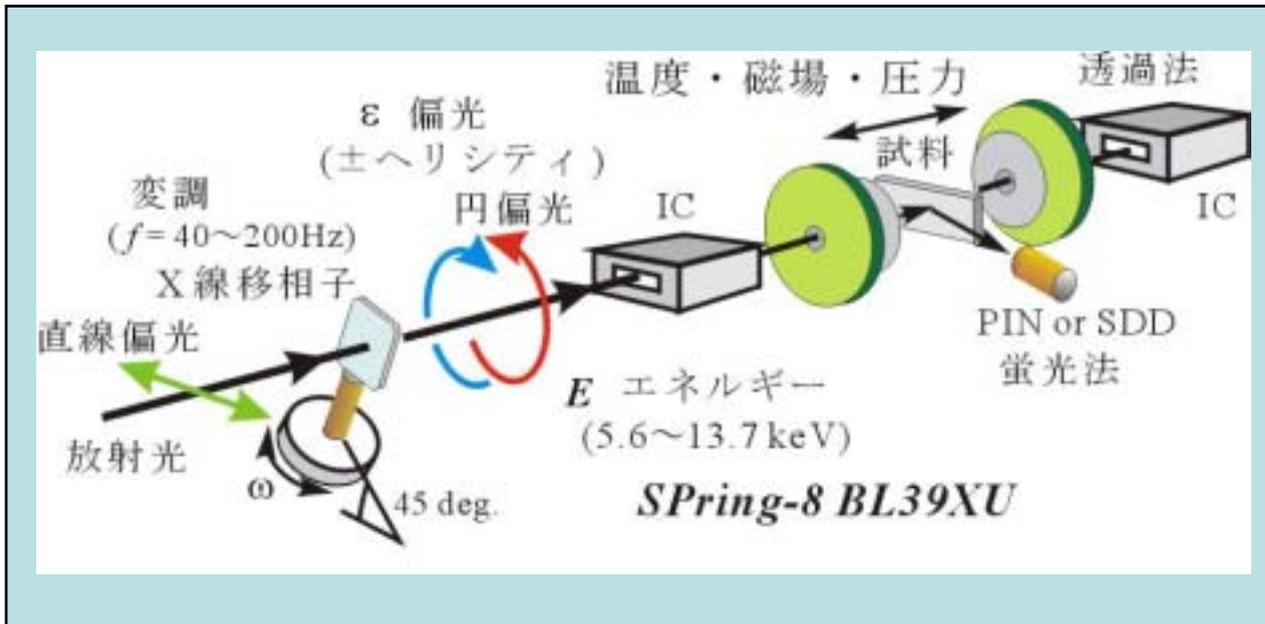
★ XMCDの特長

X線移相子 \Rightarrow 左右円偏光(ヘリシティー)の制御・交番

- 偏光反転法 (外場の印加)
- 偏光変調法 (高効率, 高精度)

★ Pt L-吸収端XMCDの特徴: $2p \rightarrow 5d$ 双極子遷移

- バルクの情報 (高エネルギー)
- 磁気モーメントの定量性



外場

温度: 1.5~300 K

300~800 K

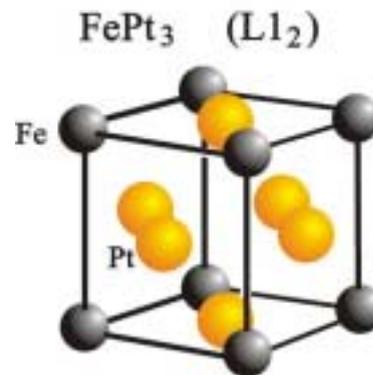
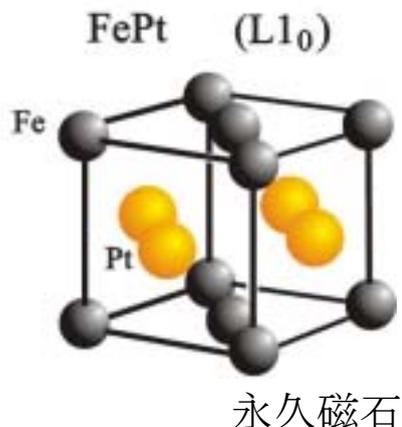
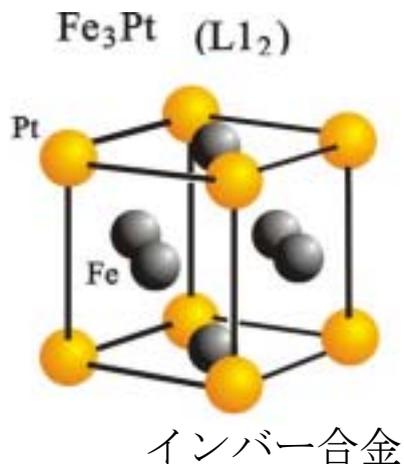
磁場: 最高 ± 10 T

圧力: 最高 50 GPa

測定モード

透過法

蛍光法



Fe-Pt系

	Fe_3Pt	FePt	FePt_3
規則相	Ferro	Ferro	Anti-F
不規則相	Ferro	Ferro	Ferro

TM-Pt₃系

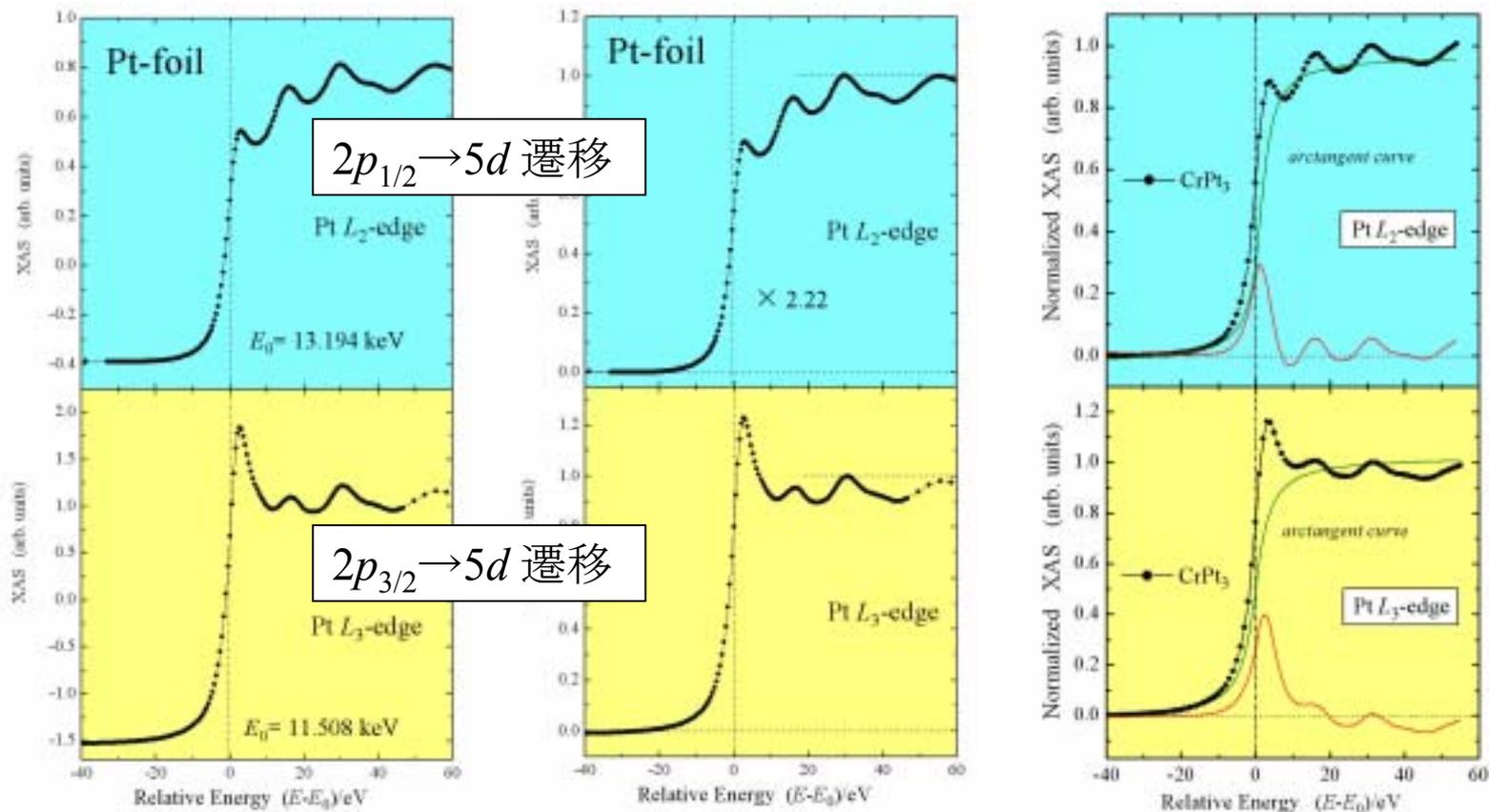
	CrPt_3	MnPt_3	FePt_3	CoPt_3
規則相	Ferri	Ferro	Anti-F	Ferro
不規則相	AF or P	Anti-F	Ferro	Ferro

研究の動機

- (1) 規則構造と磁気秩序の形成機構
- (2) Pt 5d-電子状態とPtが磁性に及ぼす効果と役割
- (3) 重原子の磁性とスピン軌道相互作用

Ptを含むナノ磁性材料の評価

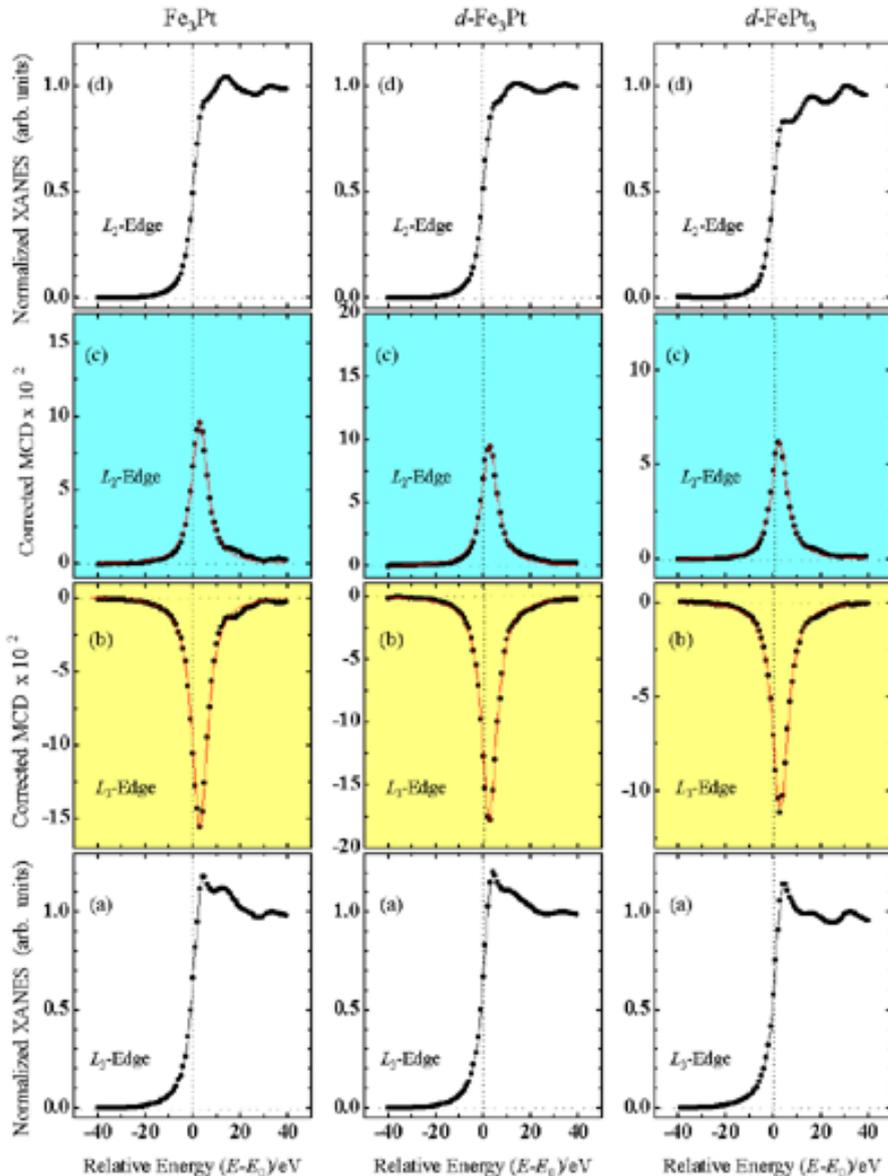
X線吸収分光(XAS)



- ◆ バックグラウンド除去
- ◆ 規格化
- ◆ 再スケーリング $L_3:L_2 \approx 2:1$

- ◆ 連続的吸収BGの除去
arc-tangent 曲線
- ◆ white-line の見積

Fe-Pt系



$$\begin{aligned} \text{XAS} &\equiv [\mu^+(\uparrow)t + \mu^-(\uparrow)t] / 2 \\ \text{XMCD} &\equiv \mu^+(\uparrow)t - \mu^-(\uparrow)t \\ &\equiv \mu^+(\uparrow)t - \mu^+(\downarrow)t \end{aligned}$$

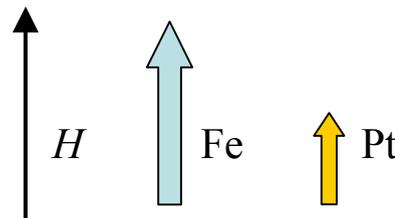
XMCDプロファイル

◎ Lorentz 関数

(Lorentz + Gauss) = 擬Voigt 関数
(95 : 5)

◎ 磁気分極状態 (強磁性)

L_2 -吸収端 : 正 L_3 -吸収端 : 負



◎ Branching ratio :

$\text{XAS}(L_3) : \text{XAS}(L_2) \neq 2 : 1$
 $\Rightarrow 5d$ ホール数

$\text{XMCD}(L_3) : \text{XMCD}(L_2) \neq -1 : 1$

\Rightarrow 軌道磁気モーメント

$$\rho \equiv \frac{\int_{L3} \Delta \mu t dE + \int_{L2} \Delta \mu t dE}{\int_{L3+L2} (3 \mu t) dE}, \quad \rho \equiv \left(\frac{1}{2} \right) \frac{\langle L_Z \rangle}{h_{5d}}$$

$$\delta \equiv \frac{\int_{L3} \Delta \mu t dE - \frac{c+1}{c} \int_{L2} \Delta \mu t dE}{\int_{L3+L2} (3 \mu t) dE}, \quad \delta \equiv \left(\frac{2}{3} \right) \frac{\langle S_Z \rangle}{h_{5d}} + \left(\frac{7}{3} \right) \frac{\langle T_Z \rangle}{h_{5d}}$$

Ref.: Thole *et al.*, PRL. **68** (1992) 1943;
Carra *et al.*, PRL. **70** (1993) 694.

$$\rho \equiv \frac{\text{XMCD 積分強度}}{\text{XAS 積分強度}} \Rightarrow \langle L_Z \rangle$$

$$\mu_L = -\langle L_Z \rangle \mu_B, \quad \mu_S = -2\langle S_Z \rangle \mu_B, \quad \mu_T = \mu_L + \mu_S$$

μ_L : 軌道磁気モーメント

μ_S : スピン磁気モーメント

μ_T : 全磁気モーメント

$$2p^6 5d^9 \rightarrow 2p^5 5d^{10}$$

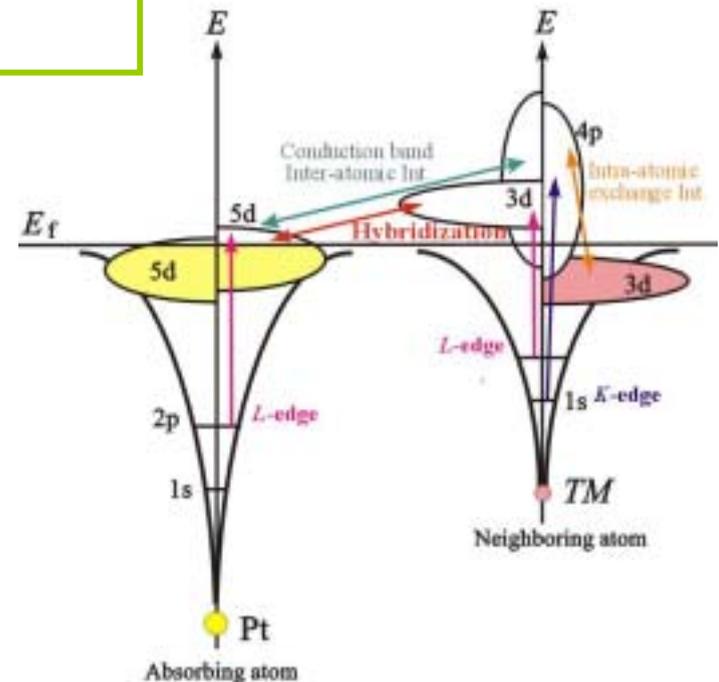
双極子遷移

$\langle L_Z \rangle$ 軌道角運動量期待値

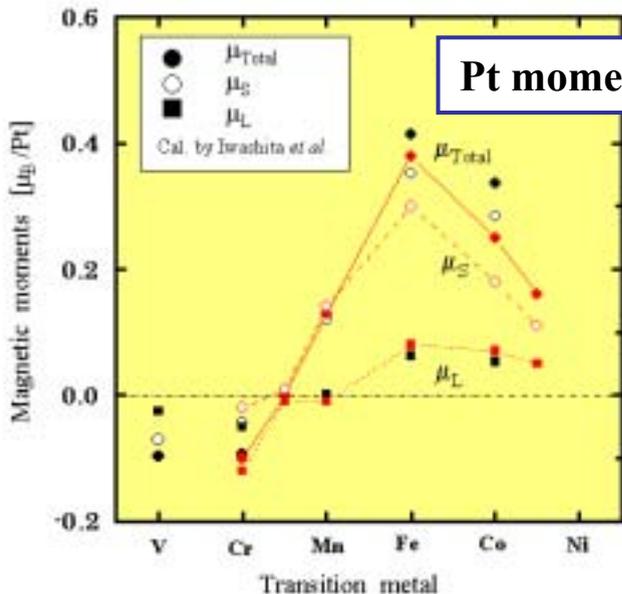
$\langle S_Z \rangle$ スピン角運動量期待値

$\langle T_Z \rangle$ 磁気双極子期待値

h_{5d} : 5d ホール数

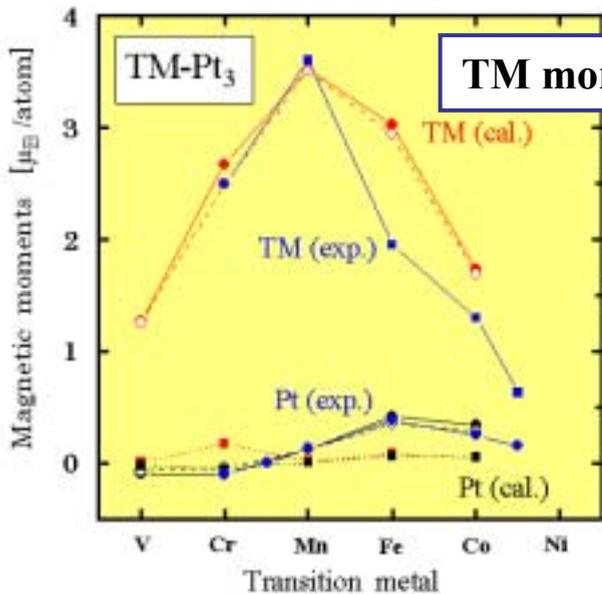


第一原理バンド計算



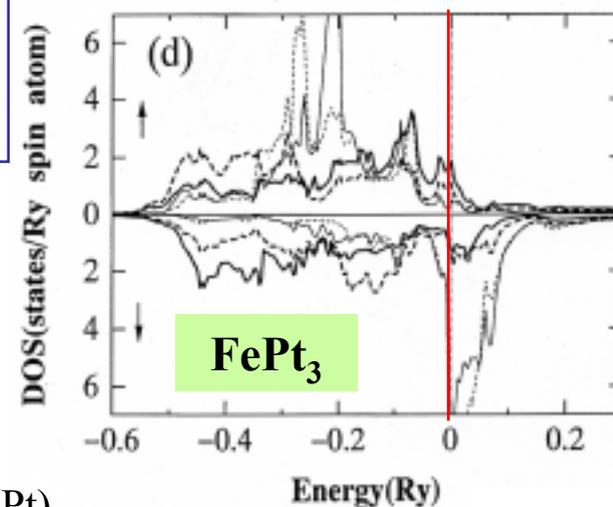
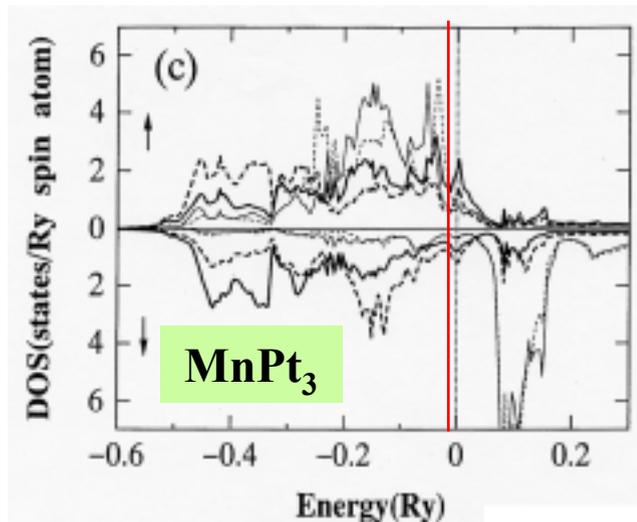
Pt *L*-吸収端XMCD
★ TMの磁気状態の
良いプローブ

TM(3*d*)-Pt(5*d*)の
強い混成

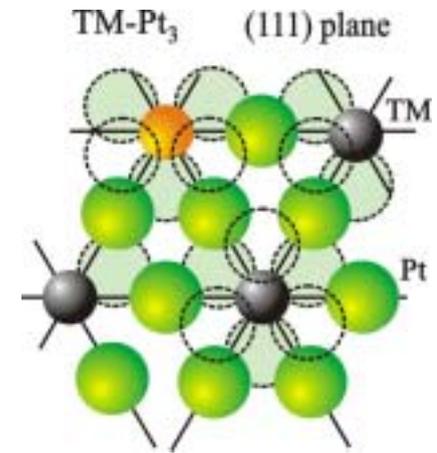
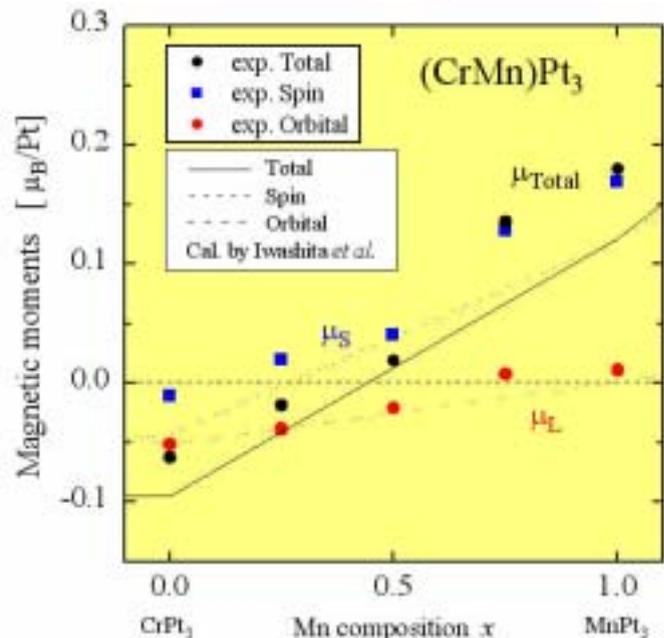
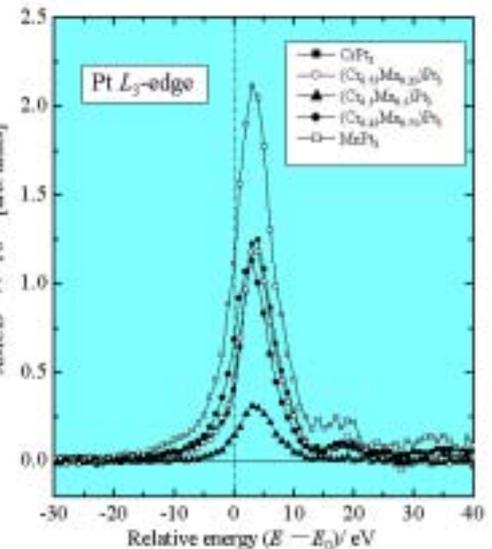
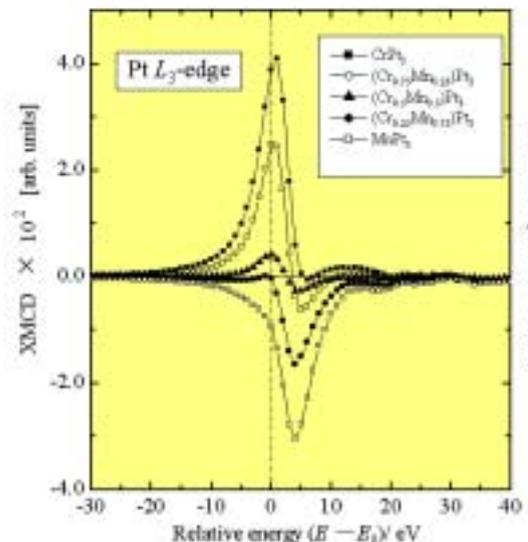
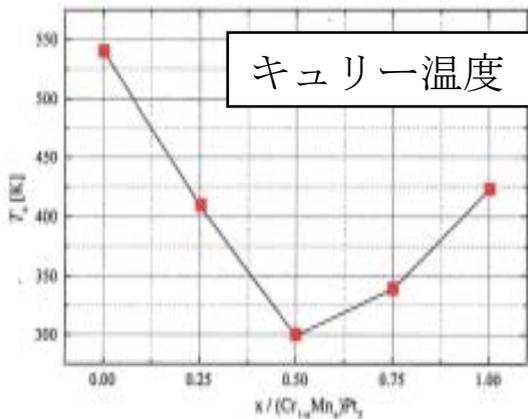
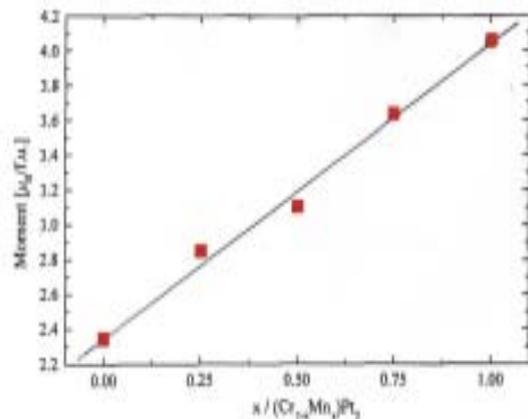


$$\mu(TM) = \mu(f.u.)_{exp} - 3\mu(Pt)$$

Ref.: Iwashita, Oguchi, and Jo, PRB54 (1996) 1159;
Oguchi, Iwashita, and Jo, Physica B 237&238
(1997) 377.



飽和磁気モーメント(磁化測定)



擬二元規則合金の構造モデル
TMの孤立化

分子場理論

$$T_C = \frac{2zJ_c S(S+1)}{3k_B}$$

磁気記録媒体HD

Co(70)Cr(1-x)Pt(x)スパッター膜



厚さ10nm

垂直磁気異方性の発現機構

- ★ スピン軌道相互作用
- ★ 金相学的組織（析出，配向）
CoPt, CrPt₃ ?
- ★ 形状異方性

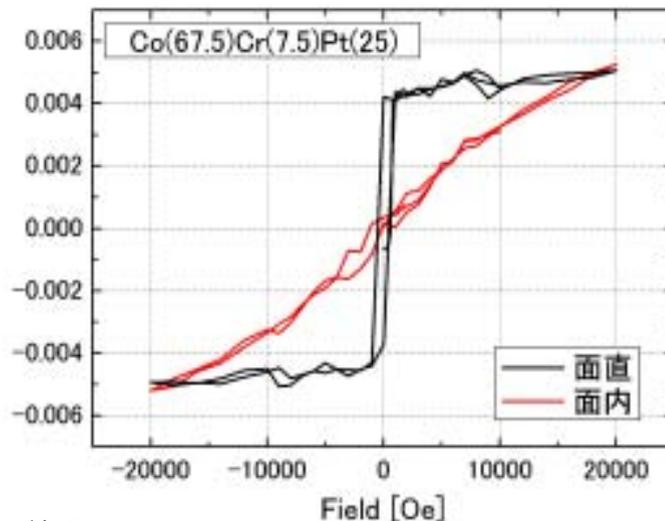
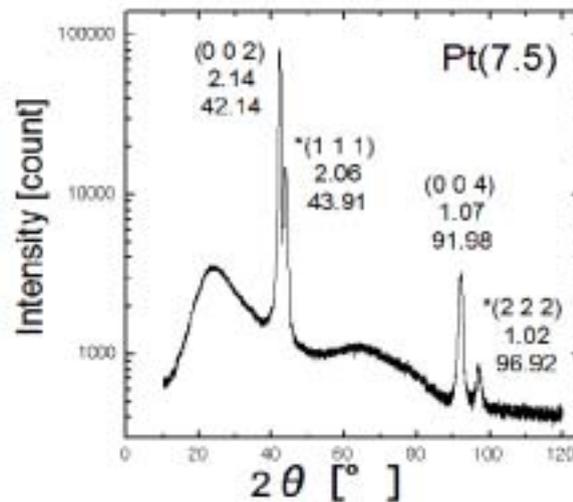


XMCD
軌道成分の寄与に注目

$$\frac{\langle L_z \rangle}{\langle S_z \rangle} \text{ 比}$$



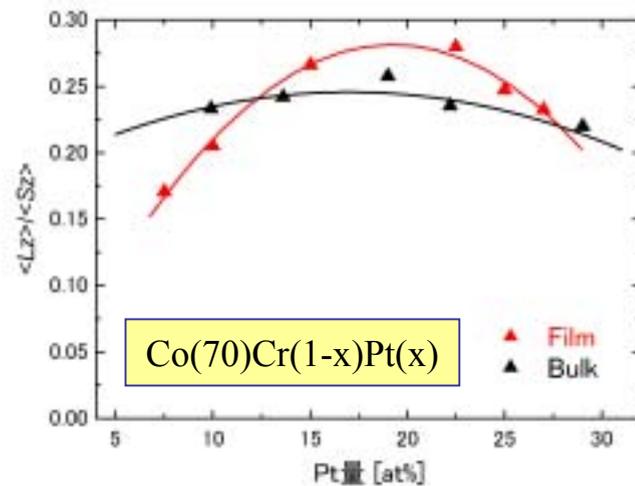
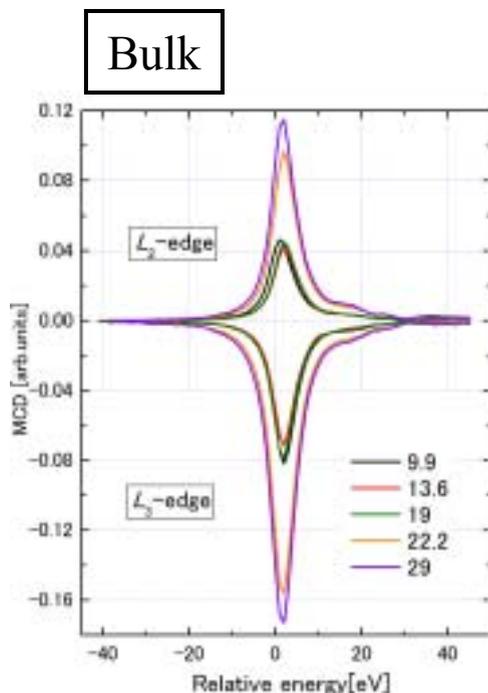
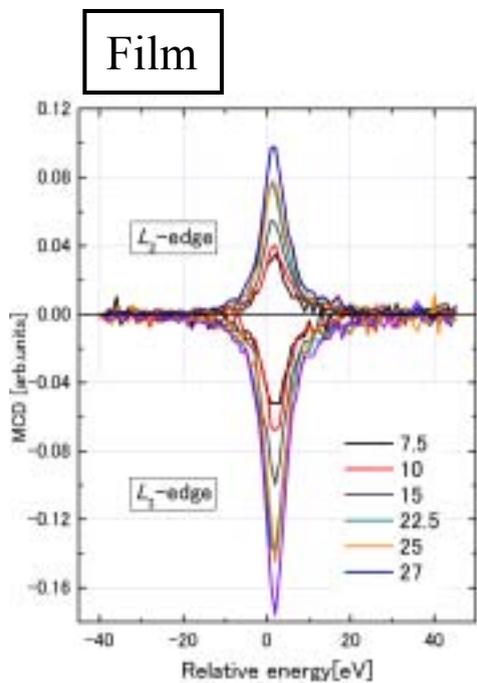
HDD (80GB)



磁化(SQUID)

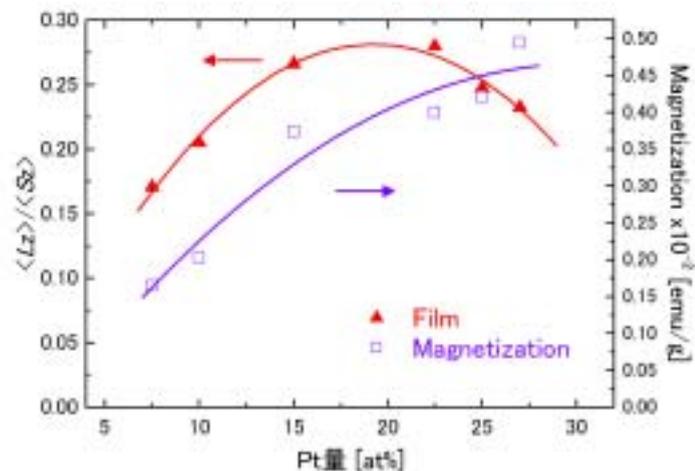
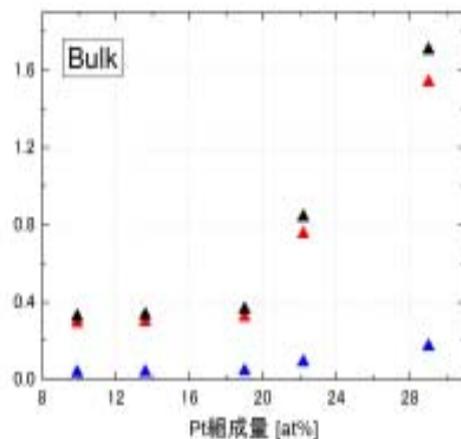
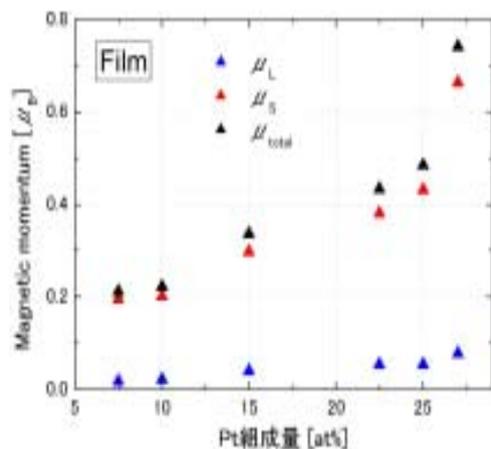
(CoCr)Pt膜のPt L-吸収端XMCD

軌道成分の寄与



$$d\text{-CoPt}_3 \quad \frac{\langle L_z \rangle}{\langle S_z \rangle} = 0.347$$

$$d\text{-CoPt} \quad \frac{\langle L_z \rangle}{\langle S_z \rangle} = 0.398$$

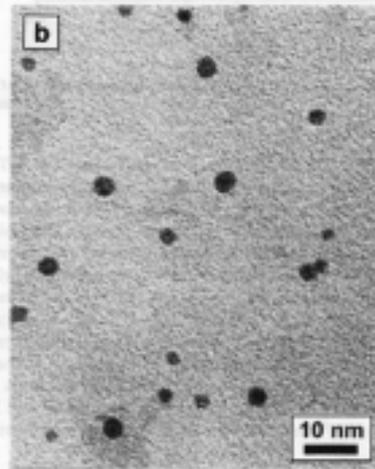
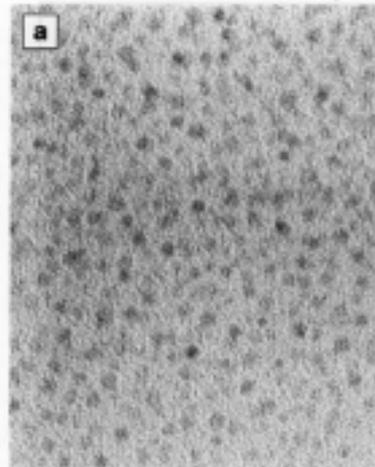
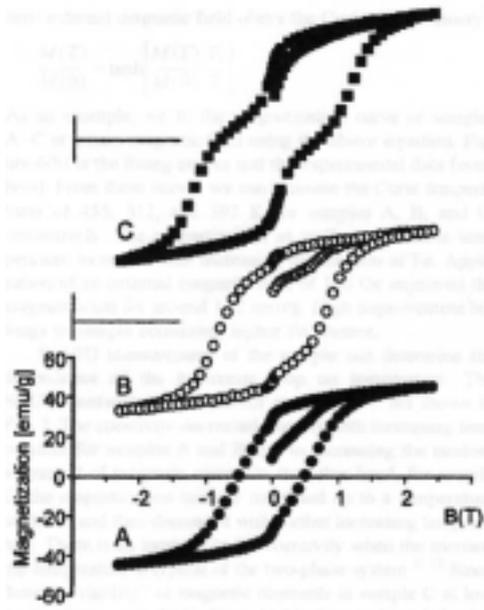


Ref.: Iwaki *et al.* JAP **94** (2003) 6807.

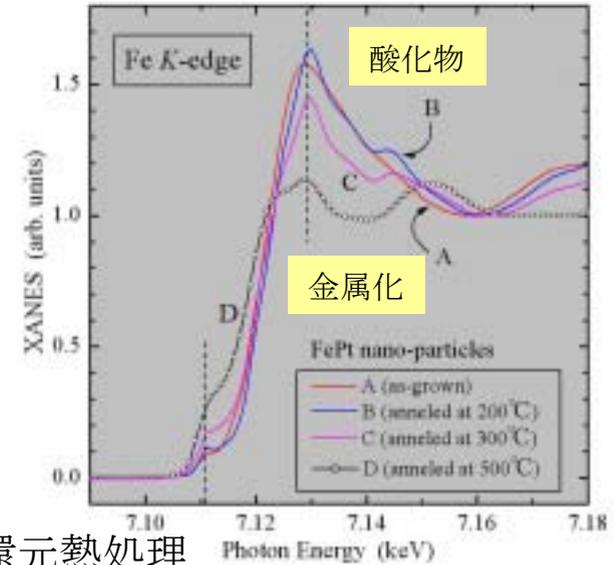
アルコキシド法・液相還元法
高単分散ナノ粒子

高保磁力 10 kOe
自発磁化 60 emu/g

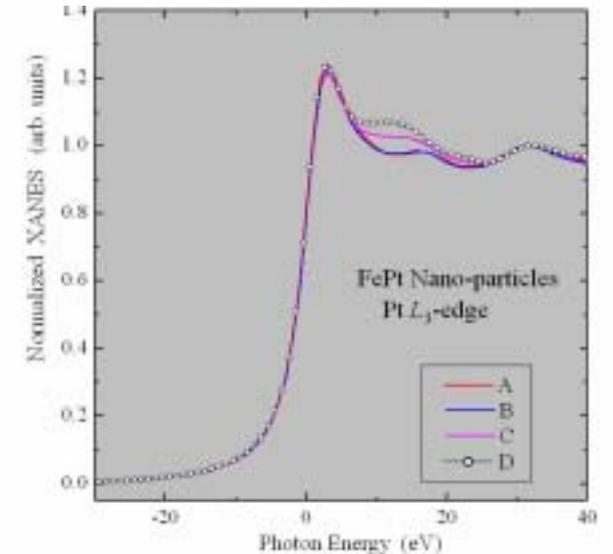
次世代の高密度HDへの応用



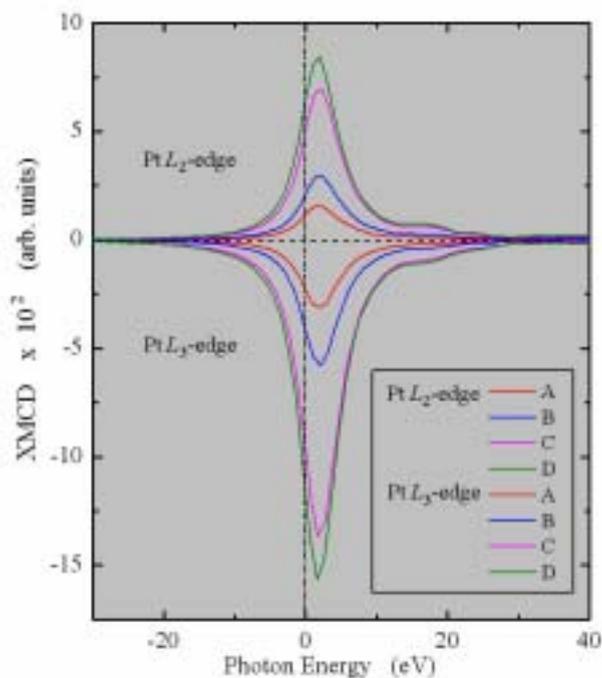
TEM写真



還元熱処理



FePtナノ粒子のPt L-吸収端XMCD

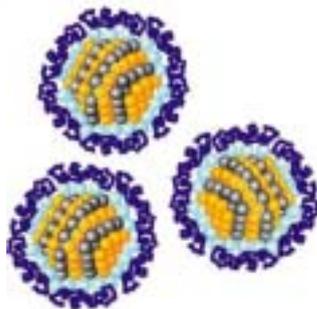


FePt-Ag 粒子

規則相FePt (L1₀型)
ナノ粒子



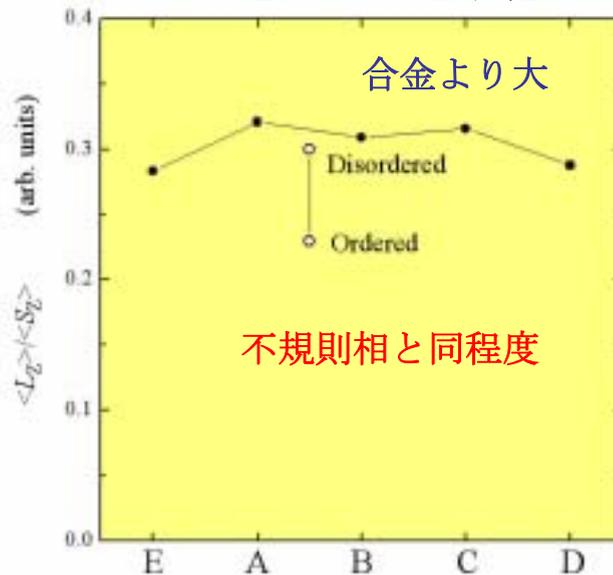
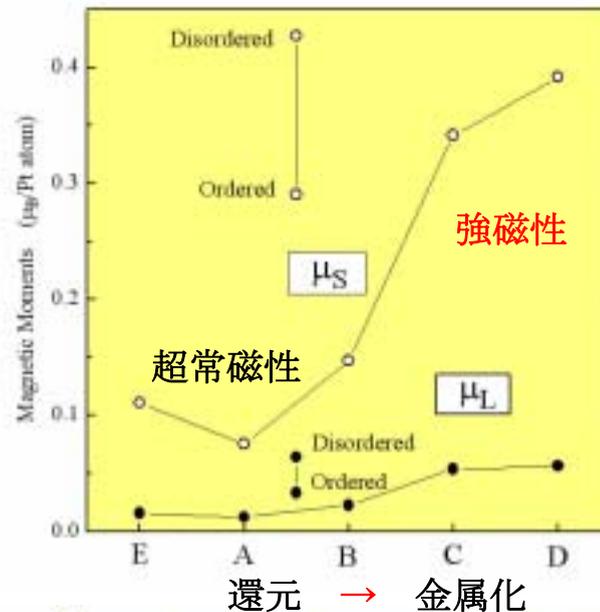
焼結を避ける
Ag 添加



FePtナノ粒子
= 歪んだ規則合金

規則化温度が高い

軌道成分の寄与

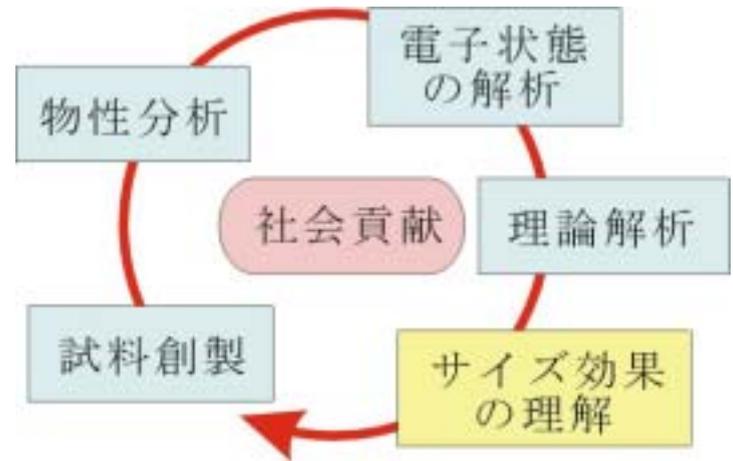


まとめ 課題と近未来

- (1) 規則構造 TM原子の孤立化
- (2) Pt 5d-電子 TM 3d-電子との強い混成

規則構造を取る

- (3) Pt原子の強いスピン軌道相互作用
XMCDはナノ磁性材料の評価に有効
作製条件の最適化
磁気異方性発現機構の理解



課題

マクロな磁性（異方性）と原子レベルの情報との対応
サイズ効果の確認
ナノ物質の特徴は何か？ それは何に由来するのか？

近未来

原子レベルでの理解，定量的な評価
ナノ磁性材料，磁気特性の設計性向上
異方性の向上，高密度化と自己組織化