

負の一軸結晶磁気異方性を有する hcp-CoIr 単結晶薄膜における Ir  
軌道磁気モーメントと結晶磁気異方性定数との相関  
Correlation between orbital magnetic moment and magnetocrystalline  
anisotropy constant in hcp-CoIr single crystal thin films with negative  
uniaxial magnetic anisotropy

小川 智之<sup>a</sup>, 長谷川 大二<sup>a</sup>, 児玉 謙司<sup>b</sup>, 鈴木 基寛<sup>c</sup>, 角田 匡清<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Tomoyuki Ogawa, <sup>a</sup>Daiji Hasegawa, <sup>b</sup>Kenji Kodama, <sup>c</sup>Motohiro Suzuki, <sup>a</sup>Masakiyo Tunoda

<sup>a</sup>東北大学, <sup>b</sup>奈良先端科学技術大学院大学, <sup>c</sup>高輝度光科学研究センター

<sup>a</sup>Tohoku University, <sup>b</sup>NAIST, <sup>c</sup>JASRI

H.c.p. Co-Ir 合金が有する負の結晶磁気異方性の起源を明らかにするために、大型放射光施設 SPring-8 の BL39XU にて hcp[001] と [110] の XMCD 測定し、その結果に磁気光学総和則を適用することにより、Ir の軌道磁気モーメント、 $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}$  の結晶方位依存性を評価した。その結果、負の結晶磁気異方性を有する h.c.p. Co-Ir の Ir 軌道モーメントは結晶方位に関わらず符号は負であり、 $M_{\text{Co}}^{\text{orb}}[001] > M_{\text{Co}}^{\text{orb}}[110]$  であることが明らかとなった。結晶磁気異方性の起源がスピン軌道相互作用エネルギーの結晶方位による差であることを考慮すると、負の結晶磁気異方性に対し Ir の軌道モーメントが大きな役割を果たしていることが明らかとなった。

To clarify a origin of negative magnetocrystalline anisotropy in h.c.p. Co-Ir alloy, the crystallographic axis dependences of the orbital moment,  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}$ , of Ir for Co-Ir single crystal films were investigated with X-ray magnetic-circular-dichroism, XMCD and the magneto-optic sum rules. As a result, it was found that both of the sign of  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[100]$  and  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110]$  were negative and  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[001] > M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110]$ . This suggests that one of the the origin of the negative magnetocrystalline anisotropy in h.c.p. Co-Ir alloy was the spin orbit interaction in Ir.

キーワード：負の結晶磁気異方性、六方晶 Co-Ir 合金、X 線磁気円二色性、元素別磁化測定、軌道磁気モーメント

**背景と研究目的：** 負の一軸結晶磁気異方性を有する材料は、磁化容易方向が c 面内にあり、a-c 面内における大きな磁気異方性エネルギー ( $|K_{\text{u}}| \sim 10^6 \text{ erg/cm}^3$ ) にもかかわらず c 面内における磁気異方性エネルギーが小さい ( $K_4 \sim 10^3 \text{ erg/cm}^3$ ) ため、c 面内の磁化ベクトルの運動に対しては軟磁気特性を発現する特異な性質を有する。このため同磁性材料は、インダクターの磁心、アンテナ基板、電磁波ノイズ吸収体等の高周波デバイス用磁性材料としての応用が期待されている他、超高密度垂直磁気記録媒体における軟磁性裏打ち層あるいは磁性記録層ならびに MRAM 等スピントルクデバイスにおける強磁性固定層など広い分野への応用が検討されている。

筆者らは高周波デバイス用磁性材料として負の  $K_{\text{u}}$  を有するナノ粒子に着目し、薄膜による材料探査・磁気物性値 ( $K_{\text{u}}$  および飽和磁化  $M_{\text{s}}$ ) 評価およびナノ粒子化に伴う磁気特性の変化を検討してきた。その結果、薄膜による材料探

査では、負の一軸結晶磁気異方性を有する hcp-Co<sub>83</sub>Ir<sub>17</sub> 不規則合金薄膜において絶対値が比較的大きな負の異方性磁界 ( $H_{\text{k}} = 2K_{\text{u}}/M_{\text{s}} = -12\text{kOe}$ ) を有することを見出した。また、負の  $K_{\text{u}}$  を有する材料は、10nm 程度のナノ粒子化に伴い c 面内のみを発現する 2 次元的な超常磁性現象という全く新しい物理現象の存在を実験的に実証し、非常に優れた高周波磁気特性を示すことを理論計算により見出した。高周波デバイス応用のためには、上限周波数向上の観点からはさらに大きな  $H_{\text{k}}$  の絶対値が求められており、現在、第 3 元素の添加による結晶磁気異方性 ( $K_{\text{u}}$ ) および飽和磁化 ( $M_{\text{s}}$ ) の制御を検討している。しかしながら、hcp-CoIr の結晶磁気異方性の起源は、理論・実験を通じてこれまでに明確化されておらず、第 3 元素種の選択指針が定まっていないのが現状である。

そこで、本研究では、Co-Ir 単結晶合金薄膜ならびに比較対象として、正の一軸磁気異方性を示す Co-Pt 単結晶合金薄膜について Ir・Pt-L 吸収

端の XMCD スペクトルを高精度で得、同スペクトルに磁気光学総和則を適用することにより、hcp-Co 合金における Ir・Pt のスピン・軌道モーメントの結晶方位依存性を分離評価し、CoIr の特異的な結晶磁気異方性の起源を明らかとすることを目的とする。

**実験：** 試料は、単結晶 MgO(110) 基板上に成膜された(100)配向した h.c.p.  $\text{Co}_{100-x}\text{Ir}_x$  ( $x=2, 5, 17\text{at}\%$ ) 擬単結晶薄膜(80nm)を用いた。比較対象として正の一軸異方性を有する h.c.p. $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$  も作製した。

Ir および Pt の軌道モーメントは、BL39XU にて h.c.p.[001]および[110]に磁界を印加し、L2, L3 吸収端における XAS ならびに XMCD スペクトルを蛍光法で測定し、得られたスペクトルに磁気光学総和則を適用しスピンモーメントから分離評価した

**実験結果：** 図 1 に Co-Ir および Co-Pt 薄膜における Ir・Pt の[001]ならびに[110]軌道モーメント,  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[001]$ ,  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110]$ ,  $M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[001]$ ,  $M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[110]$  の Ir および Pt 組成に対する変化を示す。結晶方位および組成に関わらず  $M^{\text{orb}}$  の符号は Co-Pt では、正であったが Co-Ir では符号が負であった。これは Ir のスピンモーメントと軌道モーメントの向きが反平行になっていることを示しており、スピン軌道相互作用エネルギー( $E_{\text{SL}} = -\lambda\mathbf{S}\cdot\mathbf{L}$ ,  $\mathbf{S}$ :スピン角運動量,  $\mathbf{L}$ :軌道角運動量)において $\lambda_{\text{Ir}} < 0$ ,  $\lambda_{\text{Pt}} > 0$ であることを意味している。結晶磁気異方性エネルギーの起源である [110]と[001]のスピン軌道相互作用エネルギーの差は、 $\lambda$ の符号を考慮すると、Ir の場合、 $E_{\text{Ir-SL}}[110] - E_{\text{Ir-SL}}[001]$

$$= |\lambda_{\text{Ir}}|S_{\text{Ir}}\cdot(L[110]-L[001])$$

Pt の場合は、

$$E_{\text{Pt-SL}}[110] - E_{\text{Pt-SL}}[001]$$

$$= |\lambda_{\text{Pt}}|S_{\text{Pt}}\cdot(L[001]-L[110])$$

となる。そこで、図 2 に、上式の左辺に対応する  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110] - M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[001]$  および  $M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[001] - M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[110]$  を Ir および Pt 組成に対して示す。参考のため各組成での  $K_{\text{u}}$  も示す。参考のため、 $K_{\text{u}}$  も示す。Co-Pt の場合、Pt 組成の増加と共に  $M_{\text{Co}}^{\text{orb}}[001] - M_{\text{Co}}^{\text{orb}}[110]$  も増大し、 $K_{\text{u}}$  の符号および変化とよく対応しており、Co-Pt において Pt の軌道モーメントが  $K_{\text{u}}$  増大の一因になっていることがわかる。一方、Co-Ir の場合、Ir 組成の増大と共に  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110] - M_{\text{Co}}^{\text{orb}}[001]$  は減少し、その符号も負となっている。このことは、Co-Ir における負の  $K_{\text{u}}$  の発現に対し、Ir の軌道モーメントが大きな役割を担っていることを意味している。

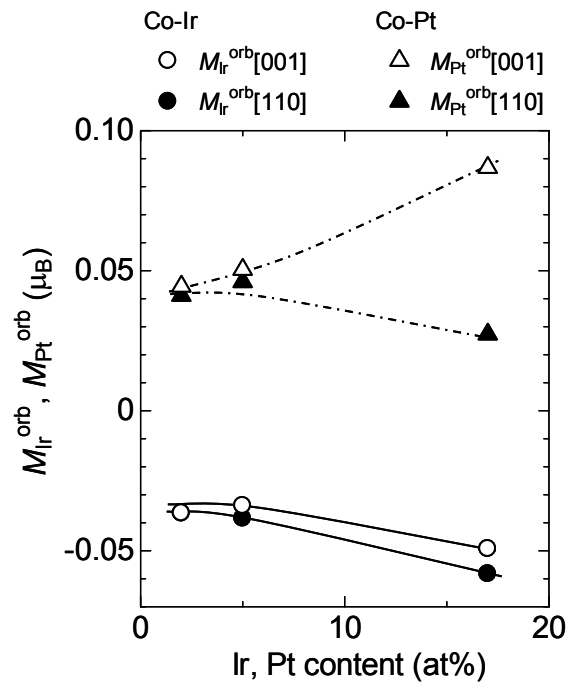


図 1 Co-Ir および Co-Pt 薄膜における Ir・Pt の[001]ならびに[110]軌道モーメント,  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[001]$ ,  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110]$ ,  $M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[001]$ ,  $M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[110]$  の Ir および Pt 組成依存性

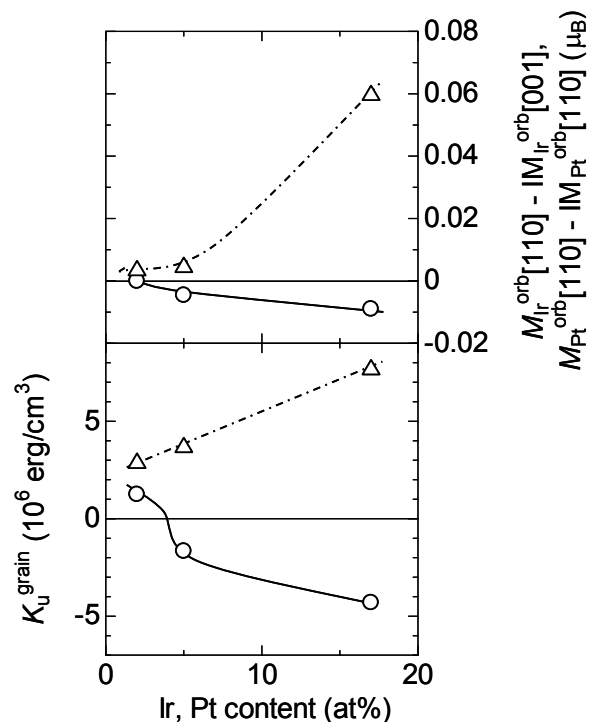


図 2 Co-Ir および Co-Pt 薄膜における Ir, Pt の軌道モーメントの結晶方位による差  $M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[110] - M_{\text{Ir}}^{\text{orb}}[001]$ ,  $M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[001] - M_{\text{Pt}}^{\text{orb}}[110]$  ならびに結晶磁気異方性,  $K_{\text{u}}$  の Ir・Pt 組成依存性