

アモルファス GdCo 薄膜の磁気光学スペクトル*

佐藤勝昭**・戸上雄司**

(昭和56年12月9日 受理)

Magneto-Optical Spectra of RF-Sputtered Amorphous Gd-Co Films

Katsuaki SATO and Yuji TOGAMI

(Broadcasting Science Research Laboratories of Nippon Hoso Kyokai,
Setagayaku, Tokyo)

(Received December 9, 1981)

Spectral dependences of polar magneto-optical effect—Kerr rotation and reflectance magneto-circular dichroism (RMCD)—of rf-sputtered Gd-Co films have been studied. The Kerr rotation angle increases slightly toward longer wavelength with a hump around 1~1.2 μm . This result favors the use of semiconductor lasers for optical reading-out of recorded signals on the Gd-Co disk. In the RMCD spectra a sign reversal is observed at certain wavelength between 0.6 and 1.1 μm , which depends strongly on the bias voltage applied during film preparation. Influence on the RMCD spectrum of oxygen introduced during bias-sputtering has also been studied.

1. はじめに

希土類と鉄族のアモルファス合金薄膜は、熱磁気記録媒体として最近注目を集めており^{1,2)}、筆者らのグループでもこのうち主に GdCo 薄膜についてさまざまな角度から研究を進めてきた³⁻⁸⁾。

今回筆者らは、磁気光学スペクトルの観点から GdCo 薄膜の研究を行った。磁気光学効果はよく知られているように透過法では Faraday 効果、反射法では Kerr 効果と称され、直線偏光を磁性体に入射した時、磁性体から出射する光の偏光面が回転する効果をさす。しかし実際には出射光はだ円偏光になっており、だ円の主軸の入射偏光面からの傾きの角を回転角と称する。だ円偏光を生じるのは右回り円偏光と左回り円偏光とに対する反射率に差があるためで、このような差を生じる効果を磁気円二色性 (Reflectance Magneto-Circular Dichroism, 略称 RMCD) と呼ぶ⁹⁾。GdCo 薄膜は殆んど光を通さないのて反射法で磁気光学効果を調べる方が有効である。

Kerr 効果は GdCo ディスクに熱磁気記録された情報を光学的に再生するために用いられる。筆者らがそのスペクトルを測定したのは以下の目的のためである。まず

第一にスペクトルを知ることにより光再生に最も効率的な波長を知ることができ、それにより使用するレーザーの選択ができること、第二に磁気光学スペクトルは物質のミクロな電子構造を反映しているため、製作条件による薄膜の性質の違いに敏感であり、従って材料の評価に用いることができることである。

しかしながら、これまでに報告された GdCo の Kerr 効果のスペクトルはわずかに二三例にすぎず、それらも Kerr 回転か MCD のいずれか一方を測定しているにすぎなかった^{8,10-12)}。また製作条件による変化を系統的に調べた報告はなかった。本稿では、GdCo 薄膜の磁気光学スペクトルを製作条件を変えて調べ、その結果について論じる。

2. 測定方法

2.1 試料

本研究に用いたアモルファス GdCo 薄膜は、高周波スパッタ法により 50 mm×50 mm のガラス基板上に製作したものである。これらはいずれも室温の付近に補償温度を有する。これらの膜の製作条件は次のとおりである。

高周波電力	65W
Ar ガス圧	8 ~ 12 × 10 ⁻² Torr
製作時のバイアス	0 ~ -100V

* 昭和56年10月9日 応用物理学会秋季学術講演会にて講演

** NHK 放送科学基礎研究所 (東京都世田谷区)

製作時の酸素圧 0 または 2×10^{-6} Torr

膜厚 1000 Å 程度

Table 1 には 3 節に引用される試料番号と製作条件との関係を一覧表として掲げる。磁気光学効果は、50 mm × 50 mm の薄膜（および基板）から中心部 10 mm × 10 mm の部分を切り出して、これについて測定した。測定は基板面側からガラスを通して行った。これは酸化の影響をうけやすいと言われている表面側より基板側の方が

Table 1 Reference table of the sputtering condition for each sample number.

Sample number	Bias voltage (V)	Oxygen pressure (Torr)
N-1	0	0
N-2	0	0
B-20	-20	0
B-40	-40	0
B-60	-60	0
B-80	-80	0
B-100	-100	0
X-100	-100	2×10^{-6}

正確な情報を与えると考えたためである。またこれは実際にディスクとして使う場合と同じ条件になっている。

2.2 装置

磁気光学スペクトルの測定には光弾性変調器を利用した磁気光学効果測定装置を用いた¹³⁾。装置のブロック図を Fig. 1 に示す。図において分光器 Mc で分光された光は、偏光子 P および光弾性変調器 Mo により、右回り、左回り円偏光が p (Hz) で交互にくりかえすような変調をうけ、試料で反射されて光検出器に導かれ、検出器 D に直流成分 I_0 , p 成分 I_p および $2p$ 成分 I_{2p} を生じる。 I_p と I_0 との比は、反射の磁気円二色性 (RMCD), $\Delta R/R$ を与え、 I_{2p} と I_0 との比は、反射の際光が受ける位相のずれの左右両偏光に対する差 $\Delta\theta$ を与える。 $\Delta\theta$ は Kerr 回転角 ϕ_K に対応し、 $\Delta R/R$ は Kerr だ円率 η_K に対応する*。

試料は、ペルチエ素子（小松 Marlow 社製 MI 1142）を用いた試料温度可変装置にマウントされ、穴あき磁極をもった電磁石の磁極間に挿入された。

試料温度は -25°C と 70°C の間で変化させることができ

* $\Delta R/R$, $\Delta\theta$ と η_K , ϕ_K との間には $\Delta R/R = 4\eta_K$ および $\Delta\theta = -2\phi_K$ の関係が成立する。

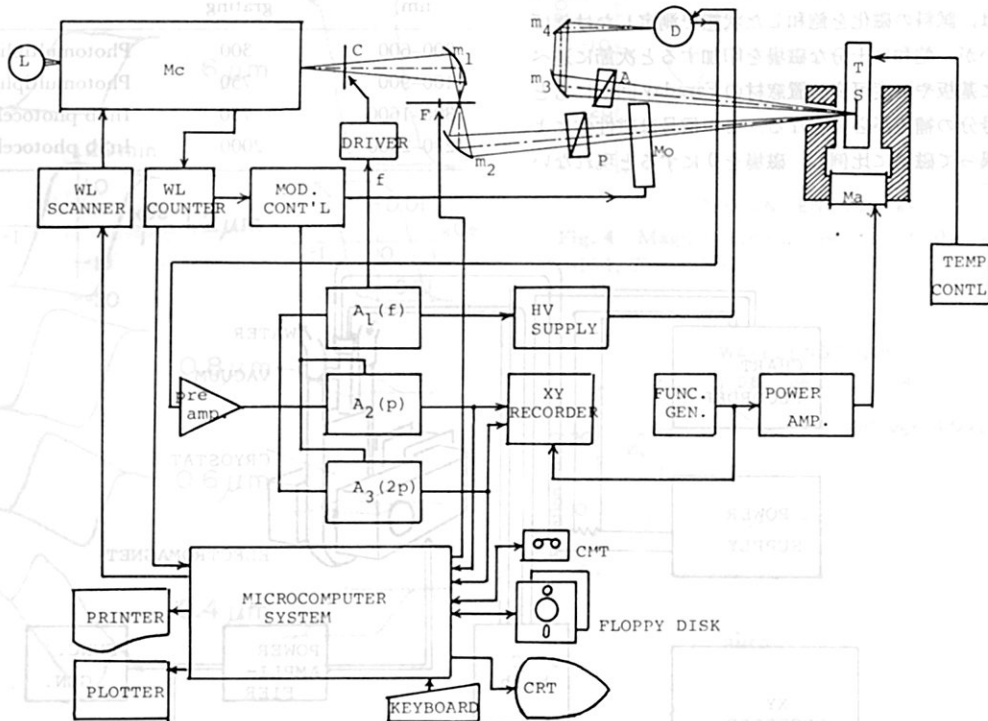


Fig. 1 An overall block diagram of the system used for the measurement of the magneto-optical spectra. (L-light source; Mc-monochromator; C-light chopper; F-filter selector; m_1 & m_2 -ellipsoidal mirrors; m_3 -spherical mirror; m_4 -plane mirror; P & A-Gran prism polarizer; D-detector; Ma-electromagnet; T-cryostat; S-sample; $A_1 \sim A_3$ -lockin amplifiers.)

3. 測定結果

3.1 ヒステリシスループの波長依存性

Fig. 3 は無バイアスの試料 N-1 の Kerr 回転と RMC D のヒステリシスループの波長依存性である。実線は Kerr 回転、点線は RMCD を表している。測定温度は -25°C である。

図に示されるように $400\sim 1,600\text{ nm}$ の範囲で Kerr 回転はあまり大きな波長依存性を示さず、ヒステリシスループの反転も見られない。一方 RMCD は大きな波長依存性を持ち、 800 nm と 600 nm との間でループの反転が見られる。

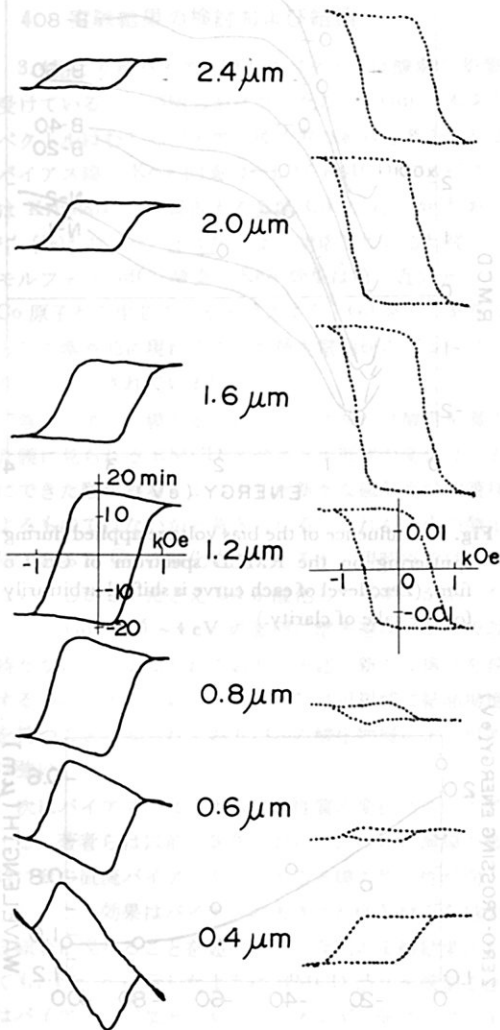


Fig. 3 Wavelength dependence of magneto-optical hysteresis loops of the sample N-1 (non-biased); solid curve-Kerr rotation, dotted curve-RMCD; $T = -25^{\circ}\text{C}$.

Kerr 回転のループを見ると短波長では左上りになっているが、これはクライオスタット窓材および薄膜の基板として用いたガラスの Faraday 回転の重畳によるものである。一方 RMCD については、吸収のない波長域では一般に小さいので、ガラスの影響は殆んど現れていない。

3.2 Kerr 回転および RMCD のスペクトル

この節では Kerr 回転角 ϕ_K および RMCD のスペクトルについて述べる。Fig. 4 には無バイアスの試料 N-1 の -25°C のスペクトルが示されている。実線は ϕ_K 、点線は RMCD である。 ϕ_K は $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下の波長域 (1.2 eV より高エネルギー側) では殆んど平坦であるが、 $1\text{ }\mu\text{m}$ より長波長側で減少していることがわかる。ピークは $1\text{ }\mu\text{m}$

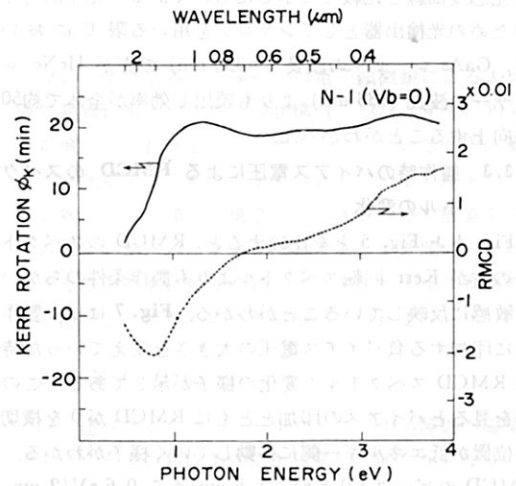


Fig. 4 Magneto-optical spectra of the sample N-1, $T = -25^{\circ}\text{C}$.

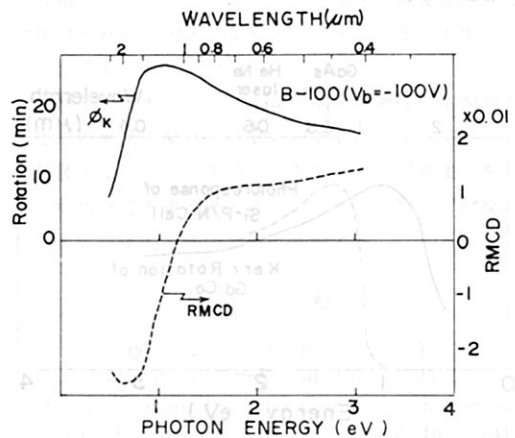


Fig. 5 Magneto-optical spectra of the sample B-100 (biased). $T = 15^{\circ}\text{C}$.

付近で、 ϕ_K の大きさはほぼ20分である*。RMCD のスペクトルには 750 nm 付近に符号の反転が見られる。0 を横切る波長は試料毎にかなりのバラツキを示す。RMCD のピークは 1.5 μm 付近に存在する。

Fig. 5 は製作時に -100V の直流バイアスを印加した試料 B-100 の +15°C におけるスペクトルである。この場合 Kerr 回転は可視から近赤外にかけて増大していく傾向を示し、ピークは 1.2 μm にあってそれより長波長側では急激に減少する。RMCD は 1 μm 付近で符号を反転する。バイアス膜では、この位置は試料によらずほぼ一定である。また RMCD のピークは 2 μm 付近にシフトしている。このピークは、無バイアス膜に比しかなり立上りが鋭くなっている。

Fig. 6 は B-100 のスペクトルを、シリコン pn セルの分光感度曲線と比較して示したものである。光学的再生のための光検出器としてシリコンを用いる限りにおいて、GaAs レーザーの波長 (~850 nm) の方が HeNe レーザーの波長 (633 nm) よりも読出し効率が全体で約 50% 向上することがわかった。

3.3 製作時のバイアス電圧による RMCD のスペクトルの変化

Fig. 4 と Fig. 5 とを比較すると、RMCD のスペクトルの方が Kerr 回転スペクトルよりも製作条件のちがいを敏感に反映していることがわかる。Fig. 7 には、製作時に印加する負バイアス電圧の大きさを変えていった時の RMCD スペクトルの変化の様子が示してある。この図を見るとバイアスの印加とともに RMCD が 0 を横切る位置が低エネルギー側に移動していく様子がわかる。RMCD のピークも 0.8 eV (1.5 μm) から 0.6 eV (2 μm)

* ガラス面からの反射光の補正をしていないことおよび残留磁化状態で測定したこと等により、 ϕ_K の絶対値には $\pm 10\%$ 程度の不確定が含まれている。

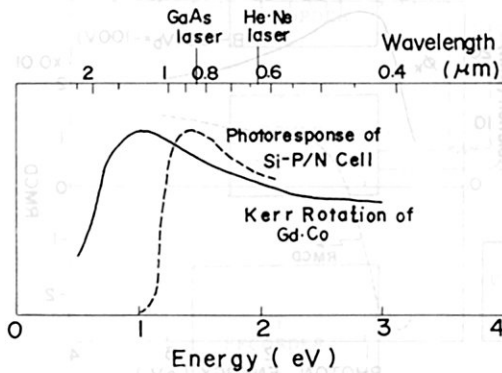


Fig. 6 Kerr rotation spectrum of B-100 compared with the photoresponse of Si pn cell.

へと移動し、かつ急峻になっていく。Fig. 8 には 0 を横切るエネルギー位置をバイアス電圧に対して示してある

3.4 酸素の効果

我々は GdCo 薄膜製作時に負バイアスを印加すると製作時にとりこまれた native oxygen が再スパッタされ、酸素濃度が低下し、膜の性質の均一性を向上させると説明してきた⁷⁾。そこで、無バイアス膜 N-1 とバイアス -100V を印加した膜 B-100、およびさらにバイアス -100

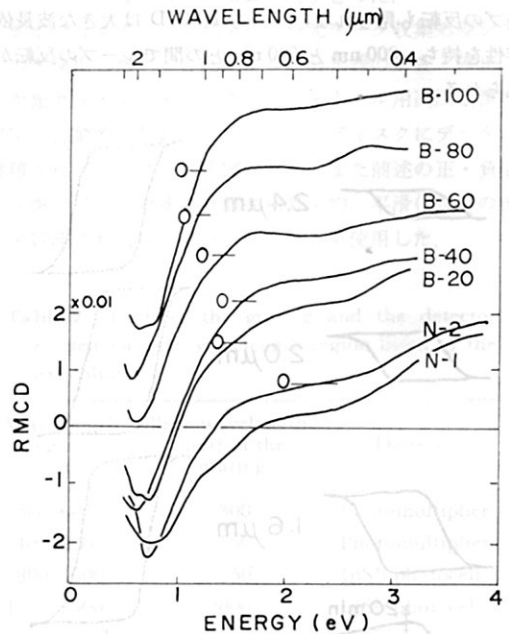


Fig. 7 Influence of the bias voltage applied during sputtering on the RMCD spectrum of Gd-Co film. (Zero level of each curve is shifted arbitrarily for the sake of clarity.)

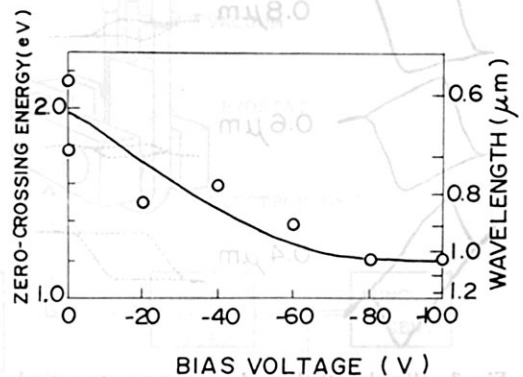


Fig. 8 A plot of the zero-crossing energy of RMCD spectrum vs. the bias voltage applied during sputtering.

Vを印加し、酸素を故意に導入した試料X-100についてスペクトルの比較を行った。その結果を Fig. 9 に示す。はじめに ϕ_k のスペクトルに注目する。1 eV 以上の領域で見ると、N-1 と X-100はほぼ同じ傾向を示すが、B-100のみは形状を異にすることがわかる。RMCD について見るとこの事情はあっさりする。N-1 と X-100の0を横切る波長付近の形状はよく対応しており、2.2 eV付近に出る構造も類似しているが、B-100のみは0を横切る位置もずれており、立上りが急峻で、1.6 eV 以上でフラットな形状を示す。これらを総合すると無バイアス膜は本質的には酸素を導入した膜と同じであると言える。

4. 実験結果の検討および結論

3.4節より無バイアス膜のスペクトルは酸素の影響を受けていることが明らかになったので、GdCo 本来のスペクトルはむしろバイアス膜の方であると考えられる。バイアス膜の Kerr 回転および RMCD のスペクトルは Krinchik らの報告する金属 Co の $\epsilon_2' \cdot (h\nu)^2$ および $\epsilon_1' \cdot (h\nu)^2$ のスペクトル¹⁵⁾によく対応している*。従ってアモルファス GdCo 薄膜の Kerr 効果は第一近似としては Co 原子から生じていると言える。Gd 原子の寄与は主として紫外部に現れることが最近電総研のグループにより明らかにされている¹²⁾。

無バイアスの膜あるいはバイアスをかけ酸素を導入した膜に見られる RMCD スペクトル形状の変化は、表面にできた酸化物層により生じた新たな磁気光学的遷移によるものではないかと考えられる。これが Gd の酸化物層であるか Co の酸化物層であるか、現時点ではわからない。しかし、たとえ Gd が酸化して Gd^{3+} があっても Gd^{3+} は 0 ~ 4 eV の範囲に電子遷移による吸収を持たないことが知られており、上述の新たな構造を説明するのはむずかしい。一方 Co^{2+} は可視域に結晶場遷移を持つことが知られており、Co の酸化物層による可能性は強い。

次にバイアス印加による膜の性質の変化について考察する。著者らは以前の報告において、GdCo 薄膜の製作時に負の直流バイアスを印加すると膜の均一性が向上するが、この効果はバイアスの大きさが 60 V 付近を越えると顕著に現れることを述べた⁷⁾。今回の実験結果においても、Fig. 8 に示したように RMCD が 0 を横切る位置はバイアスの印加とともに低エネルギー側にシフトするが 80 V 以上では一定値に達しており、上述のことと矛盾

* Krinchik らは誘電率テンソルの非対角成分 ϵ_{xy} を次のようにしている。 $\epsilon_{xy} = i\epsilon' = i(\epsilon_1' - i\epsilon_2')$ 。誘電率テンソルの非対角項が磁気光学効果をもたらすことは例えば、ref. 16 を参照されたい。

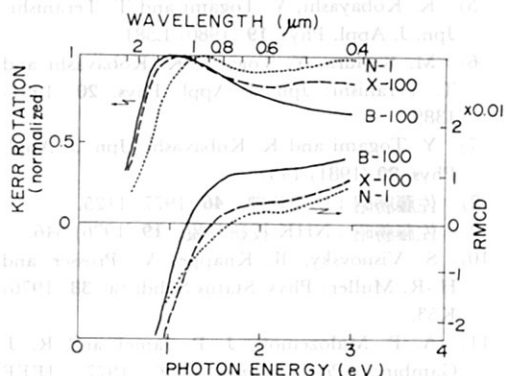


Fig. 9 Comparison of magneto-optical spectra of B-100 (biased; solid curve), N-1 (non-biased; dotted curve) and X-100 (biased and oxygen introduced; broken curve).

しない。また広島大の楠田らは電子顕微鏡による GdCo 膜の観察にもとづいて、柱状構造の形状の変化が 50 V 付近を境にして起きることを明らかにしているが¹⁷⁾、筆者らの研究結果はそれともよく対応している。以上のことから無バイアス膜では構造的にすき間が多く酸素をとり込みやすいが、バイアスを印加するとすき間の少ない構造となるとともに酸素を再スパッタして GdCo 本来の性能を持つようになるものと結論づけられよう。

5. おわりに

以上述べたように、アモルファス GdCo 薄膜の磁気光学スペクトルの製作条件による変化が明らかになり、材料の評価に用いることができることがわかった。また光読み出しに効率のよい波長を見出すことができた。

本研究では、条件を簡単にするため、アルゴン圧や高周波電力は一定にして、バイアス電圧のみ変化させたが今後はそれらの因子によるスペクトルの変化も明らかにすべきであろう。

本研究がアモルファス GdCo 薄膜の物性の解明ならびに応用の発展に役立てば幸いである。

最後になったが、本研究にあたりたえず励ましをいただいた当研究所龍岡静次次長、ならびに常にご討論いただいた寺西暎夫主任研究員に感謝する。

〔文 献〕

- 1) 戸上雄司: 応用物理, **48** (1979) 273.
- 2) 今村修武: 応用物理, **50** (1981) 1225.
- 3) Y. Togami: Proc. 10th Conf. Solid State Devices, Jpn. J. Appl. Phys. **18** (1979) suppl. **18-1**, 231.
- 4) Y. Togami, K. Kobayashi and I. Yanagida: Jpn. J. Appl. Phys. **19** (1980) 1663.

- 5) K. Kobayashi, Y. Togami and T. Teranishi: Jpn. J. Appl. Phys. **19** (1980) L581.
- 6) M. Kajiura, Y. Togami, K. Kobayashi and T. Teranishi: Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 1389.
- 7) Y. Togami and K. Kobayashi: Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 1457.
- 8) 佐藤勝昭: 応用物理, **46** (1977) 1125.
- 9) 佐藤勝昭: NHK 技研月報, **19** (1976) 346.
- 10) S. Visnovsky, B. Knappe, V. Prosser and H.-R. Müller: Phys. Status Solidi (a) **38** (1976) K53.
- 11) A. P. Malozemoff, J. P. Jamet and R. J. Gambino: Proc. Intermag Conf. (1977), IEEE Trans. Mag. MAG 13 (1977) 1609.
- 12) T. Katayama and K. Hasegawa: to be published in Proc. 4th Intern. Conf. Rapidly Quenched Metals, Sendai 1981.
- 13) K. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 2403.
- 14) 佐藤勝昭: NHK 技研月報, **23** (1980) 434.
- 15) G. S. Krinchik and V. A. Artemjev: J. Appl. Phys. **39** (1968) 1276.
- 16) 磁性体ハンドブック (朝倉書店1975年) Chap 19, p. 1005.
- 17) 大越正敏, 井上孝司, 本多茂男, 楠田哲三: 電子通信学会論文誌 C **J64-C** (1981) 740.