

氏 名	大 場 正 志		
授 与 学 位	博 士 (工 学)		
学 位 授 与 年 月 日	平 成 8 年 3 月 26 日		
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項		
研 究 科 , 専 攻 の 名 称	東 北 大 学 大 学 院 工 学 研 究 科 (博 士 課 程) 材 料 物 性 学 専 攻		
学 位 論 文 題 目	Co/X/Gd/X人工格子 (X=Pt, Cu, Ag, Au, Y, W) の 間接交換結合と磁化過程		
指 導 教 官	東 北 大 学 教 授 藤 森 啓 安		
論 文 審 査 委 員	東 北 大 学 教 授 藤 森 啓 安	東 北 大 学 教 授 鈴 木 謙 爾	
	東 北 大 学 教 授 深 道 和 明	東 北 大 学 助 教 授 高 梨 弘 毅	

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 序 論

近年、いわゆる「新素材」の研究が盛んに行われている。その中でも特に薄膜材料は小型化・高機能化が要求される電子産業にとってきわめて有効な材料である。この薄膜作製技術を応用することで、2種類あるいはそれ以上の異なった金属を数〜数十原子層ずつ交互に積層し、膜厚方向に1次元的な周期性を有する薄膜材料「金属人工格子」の研究・開発が行われている。金属人工格子は自然界には存在しない準安定相で非平衡な物質である。そのため、磁性・電気伝導・光物性等に新奇な特性が生じることが多い。その中でも中間層を介した強磁性層間の間接的な交換結合の問題は、巨大磁気抵抗効果と並んで、現在最も注目を集めているトピックスの1つである。しかし、これまでの研究の大部分は[Fe/Cr/Fe]や[Co/Cu/Co]のような遷移金属どうし、あるいは[Gd/Y/Gd]のような希土類金属どうしの、同種類の磁性層間の間接交換結合の研究であった。

また一方で、[Co/Gd]のような、中間層を介さずに異なる磁性金属層どうしが直接的な反強磁性的交換相互作用によってフェリ磁性的に結合する人工格子の研究も行われている。このような直接交換結合型フェリ磁性[遷移金属/希土類金属]人工格子に中間層を組み合わせると、中間層の種類や厚さの違いによって磁性層間の交換結合がどのように変化するかが興味を持たれる。また、中間層を介在させることによって磁性層の間の交換結合を制御し、磁性層を強磁性的に結合させることができれば、希土類金属の大きな磁気モーメントを利用した「巨大磁化材料」を創製できる可能性もある。

以上のような動機に基づいて、本研究では様々な非磁性金属X (X=Pt, Cu, Ag, Au, Y, W)を中間層として有する[Co/X/Gd/X]人工格子を作製し、磁化挙動のXの種類及び厚さ依存性を測定することにより、中間層を介した希土類金属-遷移金属間の交換結合の振舞いに関する知見を得ることを目的とした。

第 2 章 実 験 方 法

本研究で用いた試料はすべて3元イオンビームスパッタ法によって作製した。Co層厚 (t_{Co}) は30 Å, Gd層厚 (t_{Gd}) は30 Åあるいは45 Å, 中間層厚 (t_x) は0〜45 Åまでの範囲で変化させた。積層回数は16回である。作製した試料の人工周期は低角X線回折から求めた。試料の磁化測定にはSQUIDを用い、磁化曲線および磁化の温度依存性を測定した。磁化曲線は通常4.5Kで最大±55kOeの磁場範囲で行い、必要に応じて温度を変化させた。磁化の温度依存性は200Oeの

磁場中で4.5K~300Kにおいて測定し、必要に応じて印加磁場を変化させた。[Co/X/Gd/X]人工格子の磁化の値は中間層の厚みを除いた($t_{Co}+t_{Gd}$)と積層回数16から体積の計算を行い、[Co(t_{Co})/Gd(t_{Gd})]の単位体積当たりの磁化を算出した。

第3章 結果及び考察

第3章では[Co/X/Gd/X]人工格子(X=Pt, Cu, Ag, Au, Y, W)の磁化挙動について実験結果を示し、それに対する考察よりCo-Gd間の交換結合の中間層依存性を述べる。まず初めに3-1では、[Co/X/Gd/X]人工格子の結果を理解するための基礎となるデータとして、中間層のない[Co/Gd]人工格子が示す磁化挙動について述べる。次に3-2では[Co/X/Gd/X]人工格子(X=Cu, Ag, Au, Y, W)の場合について述べる。X=Ptについては他の元素と異なる磁化挙動を示すことから別節を設け、最後に3-3で述べることにする。

3-1 [Co/Gd]人工格子の構造と磁化挙動

[Co/Gd]人工格子はフェリ磁性的な磁化挙動を示す。すなわち、磁化曲線にはスピフロップ現象が、磁化の温度変化には補償現象が見られる。図1に[Co/Gd]人工格子の磁化曲線の例を示す。磁化曲線からスピフロップ磁場 H_{sf} 、Co層の磁化とGd層の磁化が反平行の状態の時の磁化 M^* が実験的に求められる。さらに、分子場モデルから H_{sf} は交換結合の大きさ J_{Co-Gd} と M^* の両方に依存することが導かれた。

3-2 [Co/X/Gd/X]人工格子(X=Cu, Ag, Au, Y, W)の構造と磁化挙動

低角X線回折結果より、良好な人工格子が形成されていることが分かった。また、すべてのXについて磁化曲線の測定を行い H_{sf} 及び M^* が中間層の種類や厚さ t_x に対してどのように振舞うかを調べたところ、 H_{sf} 及び M^* は t_x の増加に対してすべて減少することが分かった。しかし、その減少の様子には物質依存性が見られた。図2, 3に $t_x=0$ の時の値で規格化した H_{sf} 及び M^* の t_x 依存性を示す。図2, 3から分かるように、Cu, Wは t_x の増加に対して H_{sf} 及び M^* が急速に減少する。しかし、それに対してAg, Au, Yは t_x の増加に対して H_{sf} 及び M^* の減少がゆるやかであるという違いがある。

H_{sf} の変化は M^* の変化にも J_{Co-Gd} の変化にも依存する。しかし[Co/X/Gd/X]人工格子ではその両方に t_x 依存性があるため、どちらの変化が H_{sf} の変化に対してより支配的か、図2, 3の結果だけでは区別できない。そこで、 J_{Co-Gd} の t_x 依存性を考察するために、 H_{sf} の変化に対する M^* の変化の影響を調べた。図4に M^* 変化に対する H_{sf} の変化を示す。この図に示した

$\frac{M^*(t_x)}{M^*(0)} = 1$ の直線は t_x が増加した時に H_{sf} が減少しても、 M^* には変化がない場合を示している。図4から、X=Cuの場合だけは

$\frac{M^*(t_x)}{M^*(0)} = 1$ の直線

からも、その他の中間層の結果からも大きく外れていることが分かる。一方これに対して、X=Ag, Au, Y, Wの場合ではその振舞いに大きな差異は認められず、また、

$\frac{M^*(t_x)}{M^*(0)} = 1$ 近傍にあることが分かる。このことから

X=Cuの場合の H_{sf} の減少は M^* の減少が主因であり、一方、X=Ag, Au, Y,

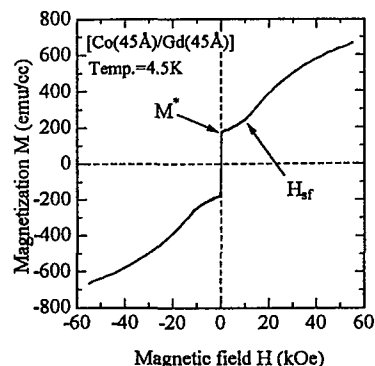


図1 [Co/Gd]人工格子の磁化曲線

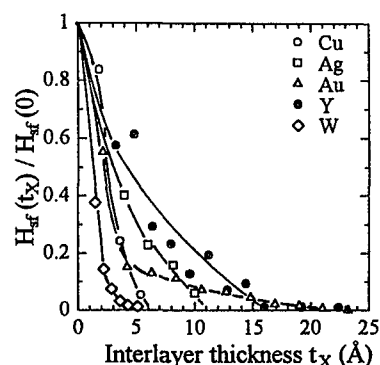


図2 規格化した H_{sf} の中間層厚依存性

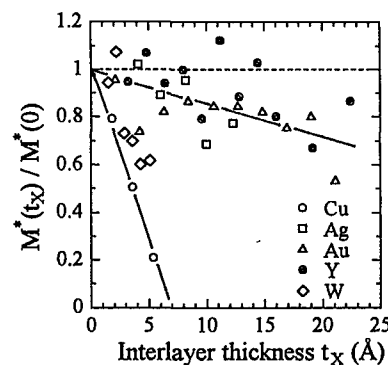


図3 規格化した M^* の中間層厚依存性

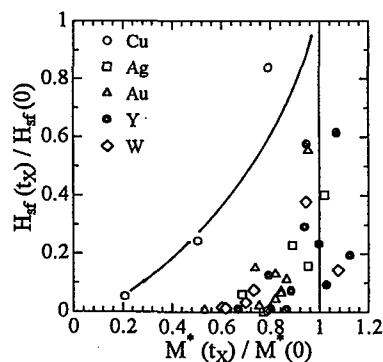


図4 [Co/X/Gd/X]人工格子(X=Cu, Ag, Au, Y, W)の H_{sf} の M^* 依存性

Wの場合の H_{sf} の減少に対して M^* の減少はそれほど影響せず、むしろ J_{Co-Gd} の変化が直接反映していると考えられる。このように考えると、図2に示した H_{sf} の t_x 依存性が中間層の種類によって異なっていることは、 J_{Co-Gd} の減衰の t_x 依存性が異なっていることを示唆している。すなわち、Wは交換結合を媒介しにくく、対照的にAg, Au, Yは交換結合の減衰が小さく、長距離まで媒介できる中間層ということが出来る。

3-3 [Co/Pt/Gd/Pt] 人工格子の構造と磁化挙動

低角X線回折より、他の中間層と同様にPtが存在しても良好な人工格子を形成していることが分かった。磁化曲線を調べると、X=Ptの場合にのみ、 t_{Pt} を増加させていく時に、ある特定の t_{Pt} の範囲でヒステリシスループがスピントロップから2度交差する特異なねじれた磁化曲線（以後Inverse loopと呼ぶ）に変化し、再びスピントロップに戻るといった振動的な変化を示すことが認められた。以後、 t_{Pt} が小さいときに起きるスピントロップをスピントロップ1、 t_{Pt} が増大して再び生じるスピントロップをスピントロップ2と呼んで区別する。図5にスピントロップ1、Inverse loop、スピントロップ2の磁化曲線の例を示す。図に示したように、Inverse

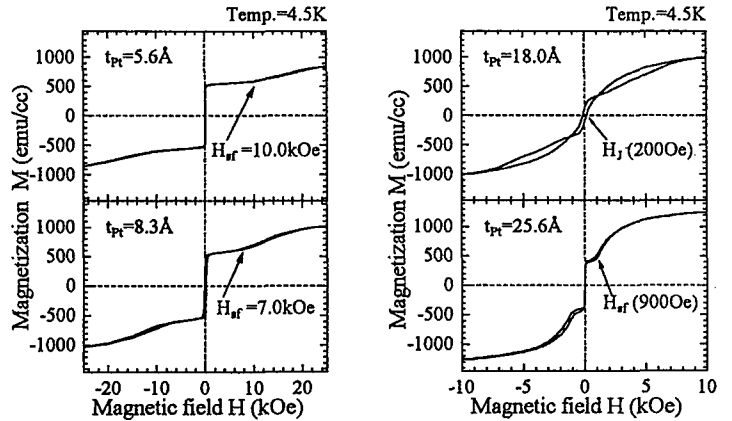


図5 4.5Kで測定した [Co(30 Å)/Pt(t_{Pt})/Gd(45 Å)/Pt(t_{Pt})] 人工格子の磁化曲線

loopから逆保磁力 H_J が定義される。図6に磁化曲線から得られる H_{sf} 及び H_J の t_{Pt} 依存性をそれぞれ示す。

このような磁化挙動の特異な t_{Pt} 依存性を考察するために、まず初めに、Inverse loopが現れる原因を述べる。Inverse loopはCo層とGd層の磁化がフェリ磁性的に結合し、Co層のみに強い磁気異方性 K_u が働いているというモデルで定性的に理解できる。また、より定量的な評価を行うため、このモデルを用いてコンピュータによる数値計算を行い、図7に示すようにスピントロップとInverse loopが再現できた。この計算結果から、Inverse loopの原因はCo層に働く強い磁気異方性 K_u であることが及びInverse loopが現れるには、 J_{Co-Gd} と K_u の大小関係が重要であることが理解される。さらに実験結果を再現するように得られた K_u の値から、Co層に働いている磁気異方性の起源は界面付近でのCo-Pt合金の形成による可能性が示唆された。

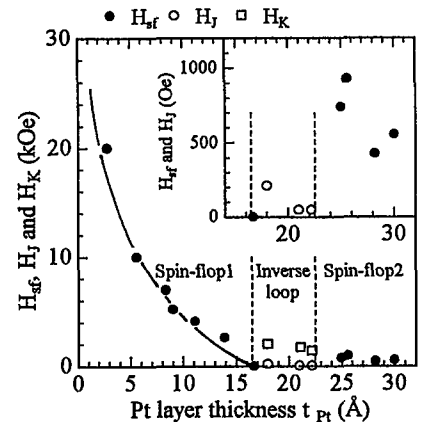


図6 [Co(30 Å)Pt(t_{Pt} Å)/Gd(45 Å)Pt(t_{Pt} Å)] 人工格子の H_{sf} 及び H_J の t_{Pt} 依存性

次にスピントロップ1→Inverse loop→スピントロップ2という磁化挙動の t_{Pt} 依存性について考察する。300Kで測定した [Co/Pt/Gd/Pt] 人工格子の保磁力の挙動と印加磁場を変えて測定した磁化の温度依存性の結果より、スピントロップ1は K_u が存在しても t_{Pt} が薄いために J_{Co-Gd} が十分に大きく、スピントロップが現れた状態、スピントロップ2は t_{Pt} が十分に厚くなり J_{Co-Gd} が弱められるにもかかわらず K_u も小さくなったためにスピントロップが現れた状態であることが示唆された。そして中間の t_{Pt} では K_u が J_{Co-Gd} と同程度か、あるいはむしろ大きくなるために、磁化曲線がInverse loopに変化した状態と考えられる。以上の結果より、[Co/Pt/Gd/Pt] 人工格子の磁化挙動の振動的な変化の主因は、 t_{Pt} の増加によってCo層に働いている磁気異方性 K_u が増加→減少と変化することであるとされる。

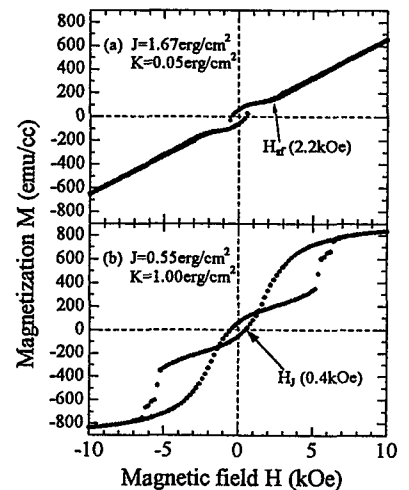


図7 計算機シミュレーションより得られた磁化曲線の例

第4章 総括

第4章では間接交換結合型フェリ磁性 [Co/X/Gd/X] 人工格子 (X=Pt, Cu, Ag, Au, Y, W) について第3章で得られた結果を以下のようにまとめた。

1. X=Cuの場合の H_{sf} の減少は M^* の減少に起因する。

X=Ag, Au, YとX=Wの場合における H_{sf} の t_x 依存性の違いは交換相互作用 J_{Co-Gd} の媒介の様子がAg, Au, YとWでは異なっているためと考えられる。

2. X=Ptの磁化挙動にはInverse loopという特異な磁化曲線が現れる。その原因はCo層に発生した大きな磁気異方性 K_u である。またスピントロップ1→Inverse loop→スピントロップ2という磁化挙動の変化は K_u が t_x の増加によって増加→減少と変化することが主因であると考えられる。

審査結果の要旨

異種原子を交互に積層した金属磁性人工格子は、巨大磁気抵抗効果の発見に見られるように新しい機能材料開発の観点から注目されている。本論文は、そのような探索研究の基礎として、人工格子の層間磁気結合と磁化過程の挙動を遷移金属 (Co) / 非磁性金属 (X=Pt, Cu, Ag, Au, Y, W) / 希土類金属 (Gd) 人工格子の場合について系統的に研究した結果をまとめたもので全編4章からなる。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。

第2章では、イオンビームスパッタによる人工格子薄膜試料の作製など実験法について述べている。

第3章では、まず、中間層XのないCo/Gd人工格子について、そのフェリ磁性のスピントロップ磁場 H_{st} 、反平行磁化 M^* 、補償温度 T_{comp} の人工格子周期 λ 依存性を、負の層間交換結合 J_{Co-Gd} を仮定した分子場モデルで解析し、特徴を明らかにしている。次いで、Co/X/Gd/X人工格子について、 H_{st} 、 M^* 、 T_{comp} の中間層厚 t_x 依存性と H_{st} の M^* 依存性をXを系統的に変えて調べ、それらを同じ分子場モデルで解析して交換結合に及ぼすXの効果を検討している。その結果、1) X=Ag, Au, Yの場合は、 J_{Co-Gd} は t_x と共に緩やかに減少し $t_x > 10 \text{ \AA}$ でも J_{Co-Gd} は生き残ること、2) X=Wの場合は、 J_{Co-Gd} は t_x と共に急峻に減少し $t_x > 5 \text{ \AA}$ で消失すること、3) X=Ptの場合は、特異な磁化挙動、すなわち、 $t_{Pt} < 10 \text{ \AA}$ ではスピントロップ型の磁化曲線を示すが、 $10 \text{ \AA} < t_{Pt} < 16 \text{ \AA}$ では“捻れループ”を伴う特異な磁化曲線となり、 $t_{Pt} > 16 \text{ \AA}$ では再びスピントロップ型に変わることを見いだしている。そして、捻れループ型磁化曲線は、これまでの分子場モデルにCo層のみに働く一軸磁気異方性を取り入れることで説明でき、コンピュータによるパラメータフィッティングで捻れループが定量的に再現できることを明らかにしている。また、パラメータの一軸磁気異方性の値は、異方性の原因をCo/Pt界面に結晶磁気異方性の大きいCoPt化合物が形成されるためと考え、妥当な大きさであることを示している。

第4章は総括である。

以上要するに本論文は、遷移金属Coと希土類金属Gdとの間に中間層を挿入したフェリ磁性人工格子を系統的に研究して、Co-Gd層間の間接交換結合についての新しい知見を得ると同時に、中間層がPtの場合に特異な磁化挙動を見だしそれを定量的に解析することに成功したもので、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。