

要旨

成膜条件及び膜厚を変化させて多結晶 Fe/Cr 多層膜を作製し、その微細構造と磁気特性の変化を調べた。Fe 層の磁化が結合する層間結合が観測され、Cr 層の厚さの変化に対応して、層間結合が平行(強磁性的)と反平行(反強磁性的)の間を振動的に変化した。基板温度を変化させることにより結晶配向が変化した、それに対応した層間結合の変化は認められなかった。一部の試料では、強磁場中で層間結合が強磁性から反強磁性に遷移するという不安定な磁化曲線が観測された。

[背景] ナノ構造を持つ金属多層膜の研究は、1988 年に Fe/Cr 多層膜において巨大磁気抵抗効果(GMR)が発見されて以来、盛んに行われてきた。また、それ以前から Fe/Cr 多層膜において、Fe 層の磁化が平行・反平行に並ぶ現象(強磁性・反強磁性層間結合)が観測されており、電子輸送現象に関する理論研究の結果、層間結合と GMR との関係が明らかにされた。層間結合の起源は、Cr 層のフェルミ面のスピニングベクトルに起因する SDW 反強磁性が深く関わっていることが理論的に証明されており、[001]方向の層間結合振動の周期の理論値は、ほぼ実験値と一致している。一方、多結晶 Fe/Cr 多層膜については結晶の不完全性のために層間結合の強度が弱まることが定性的に予想されているが、厳密な議論されていない。

我々の過去の研究では、ガラス基板上に成長させた多結晶 Fe/Cr 多層膜においてもエピタキシャル Fe/Cr(001)に匹敵するような強い層間結合が観測されている。また、Fe/Cr(001)界面では Cr のスピン配列と Fe のスピン配列が整合するため、ラフネスがない限りはスピンフラストレーションは起こらないのに対し、Fe/Cr(110)界面では完全な界面であってもスピンは整合せず、スピンフラストレーションが予想されるため、多結晶の Fe/Cr 多層膜ではスピンフラストレーションが層間結合に影響を与えることが予想される。

本研究では、基板温度などの成膜条件を変化させることにより結晶の配向性を変化させた、様々な組成比の Fe/Cr 多層膜を作製し、層間結合や磁性がどのように変化するかを調べた。

[実験方法] 超高真空蒸着装置を用いてガラス基板上に次の構造を持つ Fe/Cr 多層膜を作製した。

Fe(6)/Cr(t) : glass/Cr(80)/[Fe(6)/Cr(t)]³⁰

Fe(10)/Cr(t) : glass/Cr(80)/[Fe(10)/Cr(t)]²⁰

Fe(20)/Cr(t) : glass/Cr(100)/[Fe(20)/Cr(t)]¹⁰

成膜条件は以下の通りである。

真空度 : $\sim 10^{-9}$ Torr (到達真空度 3×10^{-11} Torr)

基板温度 : 室温 \sim 570 K

蒸着速度 : 0.03 \sim 0.2 Å/s

作製した試料の微細構造は、X 線回折(CuK α) θ -2 θ 法により調べた。一部の試料については ω スキャンも行い、Fe/Cr 界面の構造を詳細に調べた。磁化測定には SQUID を使い、-50 \sim 50kOe の範囲でヒステリシス曲線を測定した。測定温度は 5 \sim 300K の範囲で変化させた。一部の試料では四端子法による MR 測定を行った。測定温度は 5 \sim 300K、印加磁場は-70 \sim 70kOe とした。

[結果及び考察] 室温において作製した Fe(6)/Cr(t)および Fe(10)/Cr(t)の X 線回折結果から、多層膜は粉末に近い無配向多結晶であることが確認された。Fe(10)/Cr(t)の層間結合角度 ϕ は Fig.1 のように Cr 層厚に対して振動的な依存性を示した。ここで、 ϕ は $M_r/M_s = \cos \phi/2$ (M_s :飽和磁化)という関係を用いて残留磁化 M_r から求めた。t \sim 10Å で反強磁性層間結合のピークが見られたが、この結果は S.S.Parkin らの結果と一致する。また、Fig.1 では MR 比の Cr 層厚依存性が残留磁化と対応しているのが明確に確認

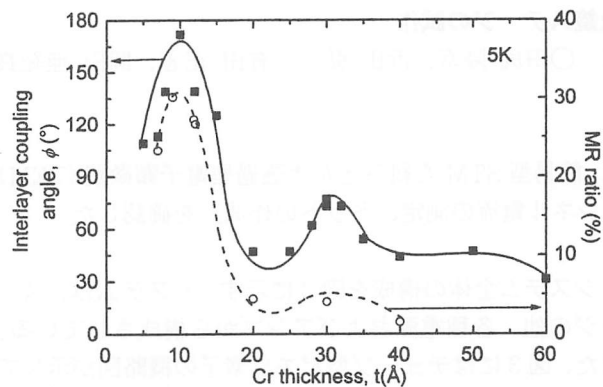


Fig.1. Cr layer thickness dependency of interlayer coupling angle ϕ and MR ratio for Fe(10)/Cr(t).

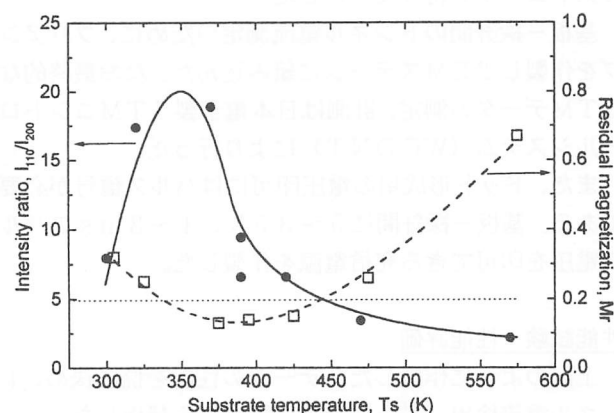


Fig.2 Crystalline orientation and residual magnetization at 5K against substrate temperature (the dotted line is I_{110}/I_{200} for powder Fe and Cr).

できる。基板温度が 470K 以下ときは X 線プロファイルには多層膜の周期に対応する低角のピーク(多層膜ピーク)が見られ、多層構造をとっているのが確認されたが、570K では多層膜ピークが確認できず、周期構造が崩れたものと思われる。また、全ての試料で 2 次以上の多層膜ピークが極めて小さいことや、高角のピークに長周期構造に起因するサテライトピークが見られなかったことから、エピタキシャル成長 Fe/Cr に比較すると多結晶 Fe/Cr 多層膜の界面の乱れは大きいものと思われる。200ピーク強度に対する 110ピークの強度比 I_{110}/I_{200} を取り、結晶配向性を比較すると Fig.2 のように基板温度 370°C 付近で(110)配向が強くなるが、それ以外の温度では無配向であることが分った。さらに、Fig.2 において I_{110}/I_{200} と残留磁化の基板温度依存性を比較したが、結晶配向性と層間結合の関連性は認められなかった。これは、層間結合の起源として結晶方位に関係のない相互作用が存在することを示唆している。

また、Fe(10)/Cr(10)という構造を持つ多層膜を同条件で

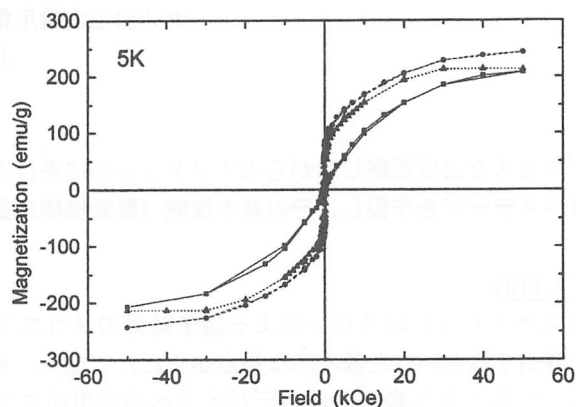


Fig.3 Three different M-H loops for Fe(10)/Cr(10) which were deposited at different times.

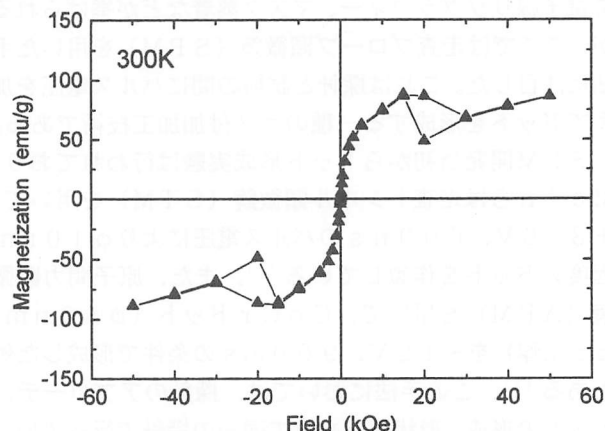


Fig.4. Anomalous M-H loop for Fe(6)/Cr(35) at 300K. Two different M-H loops seems to be combined together; ferromagnetic (-20~20kOe) and antiferromagnetic (<-20kOe,>20kOe).

三つ作製したところ、低角 X 線のプロファイルや磁化曲線の形状が異なっており (Fig.3)、層間結合は作製条件の微妙な違いに対して非常に敏感・不安定であることが予想される。他にも、Fe(6)/Cr(35)において層間結合の不安定性に起因すると思われるような磁化曲線の異常が観測された (Fig.4)。20kOe を境にして弱い磁場中では強磁性層間結合を示す磁化曲線であるが、強い磁場中では反強磁性層間結合を示す磁化曲線へと遷移しているものと思われる。このような層間結合の不安定性の原因としては界面でのスピンプラストレーションが考えられる。

[まとめ] 多結晶 Fe/Cr 多層膜において、結晶配向性の変化に対応しない層間結合が観測されたことから、層間結合の起源は結晶方位に依存しない相互作用であることが推測される。また一方では、層間結合が不安定と思われる磁化曲線が観測されたが、磁気配列に準安定状態がいくつかあり、その間を遷移しているのではないかとと思われる。