GdFe 組成変調膜のスピンフロップ現象

Spin Flopping Phenomenon in GdFe Compositionally Modulated Multilayers

神内 馨・切明 久・縄手雅彦・本多茂男

広島大学工学部, 東広島市鏡山 1-4-1 (〒724)

K. Kamiuchi, H. Kiriake, M. Nawate and S. Honda

Faculty of Engng., Hiroshima Univ., 1-4-1, Kagamiyama, Higashi-Hiroshima 724

Sputter-deposited GdFe compositionally modulated multilayers, which consist of alternately stacked Gd-rich layers (thickness d_G) and Fe-rich layers (thickness d_F), were prepared by modulating the substrate bias voltage (V_B) between 0 and -150 V. These multilayers exhibited uniaxial anisotropy in the film plane, and two-step magnetization curves appeared in films with the bilayer period larger than $500\text{\AA}$ for films in which the layer thickness ratio (d_G/d_F) is $1/3.2$ and in all films in which d_G/d_F is $1/1.6$. The magnetization process was analyzed by using a pseudo-domain-wall model, and the mechanism of the two-step magnetization curves was revealed to be as follows: the magnetization direction of each layer, which at first was parallel or antiparallel to the field, rotated away at the critical field from the field direction, in the phenomenon called spin flopping. This spin flopping was also confirmed by magnetoresistance measurements.

Key words: GdFe compositionally modulated multilayers, spin flopping, substrate bias modulation, pseudo-domain-wall model, magnetoresistance

1. はじめに

希土類 (RE)-遷移金属 (TM) 合金膜をスパッタ法で作製する場合, 作製中に基板に負バイアス電圧を印加することにより, RE 原子が選択的に再スパッタされ, RE 組成が減少する. このことを用いて, Honda や Yoshizawa らは, スパッタ中に基板バイアス電圧の変調により, 組成変調 TbCo 膜を作製した^{1), 2)}. その膜の垂直磁化曲線において 2 段階の磁化過程が観測されており, それは疑似磁壁構造モデルによって解析されている.

同様の方法で作製した GdFe 組成変調膜の面内磁化曲線において, 2 段階の磁化過程が観測されることを見いだした. 文献 1, 2 と同様のモデルで磁化過程を解析し, 考察を行う.

2. 実験方法

高周波スパッタ法によりガラス基板上に GdFe 組成変調膜を作製した. スパッタ装置の到達圧力は, 8.0×10^{-7} Torr 以下で, スパッタ中の Ar ガス圧は 20 mTorr とした. 直径 100 mm の Fe ディスク上に $10 \times 10\text{ mm}$ の Gd チップを載せた複合ターゲットを用い, 投入電力は 100 W とした. スパッタ中に基板バイアス電圧 V_B を 0 V , -150 V と交互に印加することにより, Gd の磁気モーメントが支配的な Gd-rich 層 ($V_B = 0\text{ V}$) と, Fe の磁気モーメントが支配的な Fe-rich 層 ($V_B = -150\text{ V}$) を交互に積層した (Fig. 1). Gd-rich 層, および Fe-rich 層の層厚をそれぞれ d_G , d_F とし, 層厚比 d_G/d_F が $1/1.6$ および $1/3.2$ の 2 種類の膜を作製した. 変調周期 Λ は $30 \sim 1500\text{\AA}$ の間で変化させ, 全膜厚は約 $3000\text{\AA}$ 一定になるようにした.

磁気特性の測定には, 振動試料磁力計 (VSM) および極カー効果測定装置を用いて室温で測定した. また, 4 端子法を用いて磁気抵抗効果を室温で測定した. 膜構造の解析は X 線回折装置を用い, 膜の組成分析はラザフォード後方散乱分光法 (RBS) により行った.

Fig. 1 Schematic cross-section of GdFe compositionally modulated multilayers (CMM).

Fig. 2 Magnetization curves of single-layer GdFe films: (a) $V_B = 0$ V; (b) $V_B = -150$ V.

3. 実験結果および考察

$V_B = 0$ V および -150 V の GdFe 単層膜の磁化曲線をそれぞれ Fig. 2(a), (b) に示す。実線は膜面内方向、破線は膜面垂直方向に磁場を印加したときの磁化曲線を示す。(a), (b) とともに面内磁化膜で、飽和磁化はそれぞれ $M_s^{(G)} = 135$ emu/cm³, $M_s^{(F)} = 85$ emu/cm³ である。極カーヒステリシスの極性からそれぞれ Gd-rich, Fe-rich であること、また、X 線回折からいずれも非晶質であることが確認されている。Gd 組成は、それぞれ 28.7 at% および 23.1 at% である。

作製した GdFe 組成変調膜はスパッタ装置内のターゲット位置の幾何学的な異方性により、すべて面内で一軸磁気異方性を示した。代表的な面内磁化曲線を Fig. 3 に示す。困難軸方向（容易軸に垂直方向）の磁化曲線（破線）は、ヒステリシスをもたず単調な変化を示すのに対して、容易軸方向（実線）では 2 段階の磁化過程を示す。このような 2 段階磁化過程は、層厚比 $d_G/d_F = 1/3.2$ の膜では変調周期 $\Lambda \geq 500$ Å で、層厚比 $d_G/d_F = 1/1.6$ ではすべての膜において現れる。

この 2 段階の磁化過程が始まる磁場 (H_{SF}) の Λ 依存性の実験値を Fig. 4 に○または●で示す。層厚比 $d_G/d_F = 1/3.2$ の膜では、 Λ の増加とともに H_{SF} は単調に減少する。これに対し、 $1/1.6$ の膜では、初め Λ とともに減少するが一度 200 Å と 400 Å の間では急峻に増加した後、再び減少する。

2 段階磁化過程および H_{SF} の Λ 依存性について、疑似磁壁構造モデル^{1), 2)}を用いて以下に考察する。Gd-rich 層

Fig. 3 Typical magnetization curves of GdFe CMM.

Fig. 4 Λ dependence of H_{SF} . The solid lines show the results of calculation (see the text).

と Fe-rich 層の全磁気モーメントの大きさの比 $m_G/m_F = (M_s^{(G)} \times d_G)/(M_s^{(F)} \times d_F)$ は、それぞれ 0.96, 0.50 で、いずれも 1 より小さいので、磁化容易軸方向に磁場を印加したとき、Fe-rich 層の磁化が支配的になり、Fe スピンが磁場に平行、Gd スピンが反平行に向く。しかし、層間の交換力に比べて十分大きな磁場を印加すると、Gd-rich 層の磁化が磁場に平行になるように回転し、スピン再配列が起きる。このとき、層間に疑似的な磁壁が形成される。

スピン構造を解析するために、Fig. 5 に示すように磁化容易軸を y 軸、膜面に垂直方向を z 軸にとり、層間の境界面の一つに原点 O をとる。また、試料は z 軸方向に無限に広がっているものと仮定する。磁場 0 のときは、Fe スピンはすべて y 軸方向を向いており、磁場 H が印加されると Fe スピンは回転する。このとき、Fe スピンと x 軸とのなす角 θ が試行関数

$$\theta = \alpha + \beta \left\{ \sin \left(\frac{2\pi}{\Lambda} z - \delta \right) + \sin \delta \right\} \quad (1)$$

で与えられると仮定する²⁾。ここに、 α, β は磁場 H の関数である。また、 δ は $\alpha = 0$ の時、境界面 ($z = 0, d_F$) で $\theta = 0$ となるように置いた定数で、

Fig. 5 Fe spin configuration.

$$\delta = \frac{\pi}{2} \left(\frac{1-d_G/d_F}{1+d_G/d_F} \right) \quad (2)$$

で与えられる。このとき、全系の交換エネルギー E_{ex} および異方性エネルギー E_{an} は、それぞれ

$$E_{ex} = A_F \int_{a/2}^{d_F-a/2} \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^2 dz + 2A_{FG} \int_{d_F-a/2}^{d_F+a/2} \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^2 dz + A_G \int_{d_F+a/2}^{d_F+d_G-a/2} \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^2 dz \quad (3)$$

$$E_{an} = -K_F \int_0^{d_F} \sin^2 \theta dz - K_G \int_{d_F}^{d_F+d_G} \sin^2 \theta dz \quad (4)$$

で与えられる。ここに、 a は原子間距離で、 A_F, A_G および A_{FG} はそれぞれ Fe-, Gd-rich 層および界面における交換スティフネス定数である。また、 K_F, K_G はそれぞれ Fe-, Gd-rich 層の面内異方性エネルギーである。一方、磁場を容易軸方向 (y 軸方向) または困難軸方向 (x 軸方向) に印加したときのゼーマンエネルギー E_{ze} は、

$$E_{ze}^{(e)} = -M_s^{(F)} H \int_0^{d_F} \sin \theta dz - M_s^{(G)} H \int_{d_F}^{d_F+d_G} \sin \theta dz \quad (-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2) \quad (H \parallel y) \quad (5-a)$$

$$E_{ze}^{(h)} = -M_s^{(F)} H \int_0^{d_F} \cos \theta dz - M_s^{(G)} H \int_{d_F}^{d_F+d_G} \cos \theta dz \quad (0 \leq \theta \leq \pi) \quad (H \parallel x) \quad (5-b)$$

で与えられる。これらのエネルギーの和

$$E = E_{ex} + E_{ze} + E_{an} \quad (6)$$

が極小となる α, β を求めることにより膜のスピンの構造が決定される。

単層 GdFe 非晶質膜において、交換スティフネス定数は Gd 組成に依存することが知られている。計算では、Mimura ら³⁾の値から、 $A_F = 1.8 \times 10^{-7}$ erg/cm, $A_G = 2.2$

Fig. 6 Magnetization curves (a) and Fe spin angles θ_F and θ_G at the center of each layer (a') as a function of the magnetic field H parallel to y . (b) and (b') show for $H \parallel x$.

$\times 10^{-7}$ erg/cm を用い、また、 A_{FG} に対しては、それらの平均値 $A_{FG} = 2.0 \times 10^{-7}$ erg/cm の値を用いた。 a に対しては Fe と Gd の原子直径の相加平均値 $a = 2.8 \text{ \AA}$ を仮定し、また、 $K_F = K_G = 630$ erg/cm³ と仮定した。層厚比 1/1.6, $\Lambda = 1000 \text{ \AA}$ における磁化曲線の計算結果を Fig. 6 (a), (b) に実線で示す。(a), (b) はそれぞれ容易軸方向、困難軸方向に磁場を印加した場合であり、実験結果 (破線) と良い一致を示している。このときの Fe-rich 層および Gd-rich 層の中心の Fe スピンの傾き角 θ_F, θ_G の H 依存性を Fig. 6(a'), (b') に示す。磁場を容易軸方向に印加していくとき (a'), H_{SF} で θ_F と θ_G は $\pi/2$ から急峻に減少し 0 に近づく。すなわち、中心磁化は磁場と垂直方向に回転し、スピントロップが起きる。その後、 θ_F は単調に増加、 θ_G は単調に減少し、磁化は徐々に磁場方向に揃っ

Fig. 7 Longitudinal and transverse magneto-resistance curves for GdFe CMM.

ていく。Fig. 4 に示すように、 H_{SF} の計算値 (実線) と実験値は、層厚比 1/3.2 の膜では $\Lambda = 600\text{\AA}$ 付近で多少の相違があるが全領域ではほぼ一致し、1/1.6 の膜では $\Lambda \geq 600\text{\AA}$ でよく一致している。一方、困難軸方向に磁場を印加した場合 (b'), θ_F は単調に減少する。すなわち、Fe-rich 層は磁場方向に徐々に回転する。これに対して、 θ_G は一度減少した後、単調に増加する。これは、Gd-rich 層の磁化が一度磁場と反平行な向きにわずかに回転し、その後平行な方向に回転していくことを示している。

層厚比 1/1.6, $\Lambda = 1000\text{\AA}$ の膜の磁気抵抗効果を Fig. 7 に示す。 ρ_L は、試料の容易軸方向に電流を流し、それに平行に磁場を印加したときの電気抵抗率 (縦効果) で、 ρ_T は電流に垂直に磁場を印加したときの電気抵抗率 (横効果) である。電流が流れる方向と平行に磁化が配列しているとき抵抗率が大きくなり、垂直に配列しているとき抵抗率は小さくなる (異方性磁気抵抗効果)⁴⁾ ので、 H_{SF} での ρ_L の急峻な減少は、その磁場で Fe スピンが電流に対し垂直方向に回転したことを意味している⁵⁾。すなわち、 H_{SF} でスピントロップが起こっていることを示している。その後、磁場を印加していくと、各層の磁化が電流方向 (磁場方向) に徐々に揃っていくために ρ_L は

増加する。また、低磁場における ρ_T の減少は、面内異方性が小さいため Fig. 6(b) に示すように、Gd-rich 層の Fe スピンが電流に垂直な方向 (磁場と平行) に回転するためである。その後、容易軸方向に磁場を印加したときと同様にスピントロップにより、電流と平行 (磁場と垂直) となるために ρ_T は一度増加し、磁場の増加とともに再び電流と垂直 (磁場と反平行) に回転していくため ρ_T は減少する。

層厚比 1/1.6 で $\Lambda \leq 400\text{\AA}$ の膜での低磁場での 2 段階磁化過程の原因については、現在検討中である。

4. ま と め

スパッタ中に基板バイアス電圧を変調することにより、GdFe 組成変調膜を作製した。膜には面内一軸磁気異方性が誘起され、層厚比 1/3.2 では $\Lambda \geq 500\text{\AA}$ 、1/1.6 の膜ではすべての膜において、容易軸方向に磁場を印加したとき 2 段階の磁化過程が現れた。疑似磁壁構造モデルを用いた磁化過程の解析結果は、 $\Lambda \geq 500\text{\AA}$ で実験結果と良く一致した。また、磁化過程の計算解析および磁気抵抗効果の測定から 2 段階磁化過程はスピントロップによるものであることが確認された。

謝 辞 RBS の測定に御協力頂きました広島大学工学部 西山文隆助手に深く感謝します。

文 献

- 1) S. Honda, M. Nawate, M. Yoshiyama and T. Kusuda: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 2952 (1987).
- 2) 霊山雅俊: 修士論文, 広島大学, 昭和 63 年 3 月.
- 3) Y. Mimura, N. Imamura, T. Kobayashi, A. Okada and Y. Kushiuro: *J. Appl. Phys.*, **49**, 1208 (1978).
- 4) J. Smit: *Physica*, **17**, 612 (1951).
- 5) Y. Kamiguchi, Y. Hayakawa and H. Fujimori: *Appl. Phys. Lett.*, **55**, 1918 (1989).

1993 年 10 月 14 日受理, 1994 年 1 月 28 日採録