[γ -Fe/Cu] 及び [α -Fe/Au]エピタキシャル人工格子の磁気相転移

Magnetic Phase Transition of Epitaxial γ -Fe/Cu and α -Fe/Au Artificial Superlattices

バイセンサディック

拜山沙徳克・山田保誠・近藤康寛・土井正晶・松井正顯

名古屋大学大学院工学研究科, 名古屋市千種区不老町(〒464-8603)

B. Sadeh, Y. Yamada, Y. Kondo, M. Doi, and M. Matsui

Department of Material Science and Engineering, Nagoya University,

Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603, Japan

(1998年10月15日受理, 1999年1月21日採録)

The magnetic critical exponent β and Curie temperature (T_C) of epitaxial γ -Fe/Cu and α -Fe/Au artificial superlattices prepared by the molecular beam epitaxy (MBE) method have been investigated. The critical exponent β in the relationship $M/M_S = (1-T/T_C)^\beta$ is estimated to be 0.30 ± 0.02 and $0.18 \pm 0.02 - 0.57 \pm 0.02$, respectively. The Curie temperature is decreased with decreasing Fe layer thickness. The behavior is explained by taking into account of the number of nearest - neighbor Fe atoms around an Fe atom.

Key words: γ -Fe, α -Fe, artificial superlattices, epitaxial growth, MBE method, magnetic critical exponent, Curie temperature.

1. はじめに

近年, 薄膜作製技術およびその評価, 物性測定法の進歩により, 原子層オーダーで構造を制御した金属人工格子の研究が盛んに行われている. 特に超薄膜といった低次元あるいは非平衡物質の研究が盛んに行われ, 情報化社会の発達にともなう超高密度磁気記録デバイスなどの必要性から超薄膜や極細線化ときの磁性の研究が実験的にも理論的にも興味をもたれるようになってきている. そうした磁性体の磁気相転移は実用面において非常に重要である. 我々は, 今まで [γ -Fe/Cu] 人工格子の結晶構造と磁気特性について報告¹⁾しており, 今回はそれに加えて [α -Fe/Au] 人工格子を作製し, Fe 層厚を変化させた [γ -Fe/Cu] 及び [α -Fe/Au] エピタキシャル人工格子の磁気相転移に着目し, これまで明らかでなかった臨界指数(β)と磁気相転移点の Fe 層厚依存性について検討を行った.

一般にキュリー温度(T_C)近傍の磁化は

$$M \propto (1-T/T_C)^\beta. \quad (1)$$

で表せる. ここで, β は物質の次元に依存する臨界指数である. これまでに, 臨界指数について様々な理論的, 実験的研究が行われてきた. 例えば, 理論では分子磁場近似において

$\beta=0.5$, 3 次元の Heisenberg モデルでは $\beta=0.37$, 2 次元 Ising モデル²⁾では $\beta=0.125$ が知られている. 実験では GaAs 上 Ni 表面で $\beta=0.81$ ³⁾, Pd 上の Fe 表面で $\beta=0.127$ ⁴⁾, Ni/Cu 多層膜界面⁵⁾で $\beta=0.25-0.43$ など⁶⁻¹¹⁾の報告がある. 本研究で作製した人工格子は Fe 層厚が 0.8ML から 19.2ML まで変化させており, また他の実験と違って一定の Cu や Au で Fe が挟まれて周期的に積層されている. こうした人工格子の β や T_C はこれまでに報告がなく興味をもたれる.

2. 試料の作製および実験方法

本研究における試料はすべて MBE 装置(英国 VG 社製)によって到達真空度 2×10^{-11} Torr, 成膜真空度 5×10^{-11} Torr の超高真空下で作製した. Fe は電子ビーム蒸発源(EB-gun)を用いて蒸着し, 成膜速度は $1.5 \sim 2.0 \text{ \AA}/\text{min}$ とし, 膜厚は水晶振動式膜厚計によってモニターした. Cu と Au の蒸着には PBN るつぽを装備した高温 K-cell を用い, 成膜速度は Cu が約 $3.2 \text{ \AA}/\text{min}$, Au が約 $0.9 \text{ \AA}/\text{min}$ とした. Fe, Cu, Au の各金属は 4N の純度のものを使用した. 基板には MgO(001)単結晶基板を用い, 最初に 500°C で 30 分の熱処理を行った. [γ -Fe/Cu] 人工格子では, MgO(100)基板上にまず Cu を $1000 \text{ \AA}$ 下地層として蒸着し, その上に基板温度 60°C で人工格子を作製した. Cu の層厚は 14.2 ML に固定し, γ -Fe の層厚を $0.8 \sim 7.2 \text{ ML}$ の範囲で変化させた. 積層回数は 10, 30, 50 回とした. 一方, [α -Fe/Au] 人工格子では, MgO(100)基板上にまず Cr をシード層として $50 \text{ \AA}$ を蒸着し, その上に Au を $300 \text{ \AA}$ 蒸着して下地層とした, その上に基板温度 60°C で人工格子を作製した. Au の層厚は 12.5 ML に固定し, Fe の層厚を $1 \sim 20 \text{ ML}$ の範囲で変化させ, 積層回数を 10 及び 20 回とした. 人工格子の膜面内の構造は, *in situ* で RHEED (反射高速電子線回折)を用いて観察し, 膜面垂直方向の構造は *ex situ* で X 線回折装置(Cu-K α)を用いて評価した. 磁化測定には試料振動型磁力計(VSM: 最大印加磁場 13 kOe)を使用した.

3. 実験結果と考察

Fig.1 Magnetization of $[\gamma\text{-Fe/Cu}]$ as a function of the temperature. For films 0.8 to 1.2 ML, the magnetization was measured from 4.4 K to R.T.(a). The magnetization of the thicker films was measured from 77 K to 873 K (b).

3.1 $[\gamma\text{-Fe/Cu}]$ 人工格子

$[\gamma\text{-Fe/Cu}]$ では, Cuの下地層表面の RHEED はストリーク状の $\text{fcc}(001)$ パターンが観測され, その上の Fe 層も fcc の対称性が観測された. X 線回折の結果から Fe 層厚が 4.5 ML 以下の人工格子では Fe の膜面に垂直方向の面間隔が伸びることが分かった($c/a > 1$).

Fig.1 (a), (b)に飽和磁化の温度依存性を示す. 図中の t は Fe の層厚で, 単位が ML である($1\text{ML} = 1.8\text{\AA}$). Fe が 0.8 ML の試料においては 4.4 K で $221\text{emu/g}_{\text{Fe}}$ を示し, Fe 1 原子層となっても dead layer は存在しないことが分かる. また, Fe 層厚が減少するにつれて飽和磁化が上昇していることがわかる. この結果は, Fe 層厚の減少とともに全 Fe 原子数に対して Cu 界面にある Fe 原子数の割合が増加し, $\gamma\text{-Fe}$ の高スピン状態の割合が増加するためであると考えられ, これまでの我々の実験結果¹²⁻¹⁷⁾や理論計算¹⁸⁾とも一致する. Fig.1(b)において, 磁化が約 650 K 以上で増加し, 約 700 K 以上で再び減少する傾向がある. これはアニールした試料の磁化測定と X 線回折の結果, 650 K 以上になると拡散

Fig.2 Log - Log plot of magnetization data as a function of the temperature for $[\gamma\text{-Fe/Cu}]$.

によって人工周期性が崩れ始め, $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態が起こるために磁化が増加することと, それより高温の 700 K 以上では試料の酸化が進み, 磁化が減少することが分かった. 従って, β と T_c の決定には 600 K 以下のデータを使用した. (1) 式の関係から得られる Fig.2 に示すような $\log(M) - \log(1-T/T_c)$ プロットを用いて β 及び T_c を決定した. このプロットにおいて, 最も広い温度範囲で直線性が実現される T_c を選び β を導出した. β は 0.30 ± 0.02 で Fe 層厚にほとんど依存しないことがわかった. しかし, β は一般的に次元性に依存するので Fe 層厚に依存すると考えられるが, 今回の実験では

Fig.3 Curie temperature as a function of the Fe thickness of $[\gamma\text{-Fe/Cu}]$. The dotted line shows the relationship between T_C and the Fe thickness on the assumption that T_C is proportional to the number of nearest-neighbor Fe atoms (see text).

$\gamma\text{-Fe}$ の安定な Fe 層厚が 0.8ML から 5.9ML と層厚の変化幅が小さいためである。

次に T_C の Fe 層厚依存性を Fig.3 に示す。この図より T_C は Fe 層厚の減少とともに低下していることがわかる。これは擬 2 次元磁性体の理論から計算された Myron Bander and D. L. Mills¹⁹⁾ らの結果と傾向的に一致している。また $\gamma\text{-Fe/Cu}(001)$ の場合は平均の最近接原子数(z)は Fe 原子層数 n に依存し、 $z=12-8/n$ で表される。図中の点線はこの z の値を使って計算した結果である。これは、実験データとよく一致している。このことから T_C が膜厚に依存するのは、 $\gamma\text{-Fe}$ 層厚の変化によって、Fe-Fe 原子対の平均の最近接原子数が変化するためであると考えられる。それゆえ、 $\gamma\text{-Fe}$ の高スピン状態の T_C はこの直線を $z=12$ のバルク値に外挿することによって約 650 K であると見積もることができる。

3.2 $[\alpha\text{-Fe/Au}]$ 人工格子

$[\alpha\text{-Fe/Au}]$ では、Au 下地層表面の RHEED 像はストリーク状の fcc の対称性をもつパターンが観測され、その上の Fe 層は bcc の対称性が観測された。 $[\alpha\text{-Fe/Au}]$ の磁気温度 (M - T) 曲線を Fig.4 に示す。図中の t は Fe の層厚で、単位が ML である ($1\text{ML} = 1.43\text{\AA}$)。 $[\gamma\text{-Fe/Cu}]$ の場合と同様に $\log(M) - \log(1-T/T_C)$ プロットから T_C 及び臨界指数 β を求めた。まず、Fig.5 (a) に飽和磁化(M_s)の Fe 層厚依存性を示す。この図から分かるように飽和磁化は Fe 層厚に対してほぼ一定であり、Fe 層厚が約 1 ML においても bulk と同程度もしくはそれ以上の磁化があり、この場合も $\gamma\text{-Fe}$ と同じく Fe 原子層の dead layer は存在しないことが分かる。

次に T_C の Fe 層厚依存性を Fig.5 (b) に示す。これより、Fe 層が薄くなるにしたがって T_C が減少していることが分かる。これは、Fe 層厚の減少に伴って $\alpha\text{-Fe}$ の平均の最近接原

Fig.4 Magnetization of $[\alpha\text{-Fe/Au}]$ as a function of the temperature.

Fig.5 (a) Magnetization of the Fe layer, (b) Curie temperature T_C , and (c) Critical exponent β as functions of the Fe layer thickness.

子数が減少するためであると考えられる。しかし、 α -Fe/Au では bcc(100)面の平均の最近接原子数(z)は γ -Fe/Cu のような単純な式で表すことができず、解析は困難であった。また、19.2MLのようにFeが厚い試料の T_c がバルクの T_c (= 1063 K)に比べてかなり低くなっていることがわかる。19.2MLであれば平均の最近接原子数はバルクにかなり近いので、バルクに近い T_c を示しても良いように思われる。それよりかなり低いのは、測定温度が650 K以上の高温になると人工格子の周期性が崩れ、FeとAuのミキシングがおこりはじめるためであると考えている。このように、Fe層厚が厚く、 T_c の高い試料の正確な T_c を見積もることは困難である。

Fig.5 (c) は、 β のFe層厚依存性を示す。 β は、Fe層厚の減少とともに減少する。これは、 $[\gamma$ -Fe/Cu]の場合と異なる。 $[\alpha$ -Fe/Au]の場合はFe層厚の範囲は $[\gamma$ -Fe/Cu]の場合より広い。よって β がFe層厚に対して変化するのは、次元性の変化に起因すると思われる。 β はFe層厚1.3MLでは 0.18 ± 0.02 と2次元での値に近く、9.5MLでは3次元での値に近い 0.57 ± 0.02 を示した。

4. ま と め

$[\gamma$ -Fe/Cu]および $[\alpha$ -Fe/Au]エピタキシャル人工格子の磁気相転移について調べた。

$[\gamma$ -Fe/Cu]では、臨界指数 β は 0.3 ± 0.02 であった。キュリー温度 T_c はFe層厚の減少に対して低下した。こうした挙動は、Fe-Fe原子対の平均の最近接原子数を考慮することで説明できる。また、 γ -Feの高スピンの T_c は650Kと見積もられた。

一方、 $[\alpha$ -Fe/Au]では、 α -Feの磁化はFe層厚に依存せず1MLにおいてもバルクとほぼ同じである。 $[\alpha$ -Fe/Au]の T_c はFe層厚の減少に対して低下した。 β はFe層厚に対して変化し、1.3MLで 0.18 ± 0.02 、9.5MLで 0.57 ± 0.02 であった。

謝 辞 本研究の一部は文部省科学研究費、創成的基礎研究「表面、界面構造の解析と制御」(09NP1201)、および重点領域研究「微小領域磁性」(6499223)の援助により行った。

文 献

- 1) Y. Yamada, B. Sadeh, C. Lee, M. Doi, and M. Matsui : *J. Magn. Soc. Jpn.* **23**, (1999) in press.
- 2) J. Kohlhepp, H. J. Elmers, S. Cordes, and U. Gradmann : *Phys. Rev. B* **45**, 12287 (1992).
- 3) S. F. Alvarado, M. Campagna, F. Ciccacci, and H. Hopster : *J. Appl. Phys.* **53**, 7920 (1982).
- 4) C. Liu and S. D. Bader : *J. Appl. Phys.* **67**, 5758 (1990).
- 5) F. Huang, M. T. Kief, G. J. Mankey, and R. F. Willis : *Phys. Rev. B* **49**, 3962 (1994).
- 6) J. A. Davis : *J. Appl. Phys.* **36**, 3520 (1965).
- 7) E. Kisker, K. Schröder, W. Gudat, and M. Campagna : *Phys. Rev. B* **31**, 329 (1985).
- 8) C. Rau, K. Kuffner : *J. Magn. Magn. Mat.* **54-57**, 767 (1986).
- 9) W. Dürr, M. Taborelli, O. Paul, R. Germar, W. Gudat, D. Pescia, and M. Landolt : *Phys. Rev. Lett.* **62**, 206 (1989).
- 10) Gradmann : *J. Magn. Magn. Mat.* **100**, 481 (1991).
- 11) Ch. V. Mohan and H. Kronmüller : *J. Magn. Magn. Mat.* **182**, 287 (1998).
- 12) M. Doyama, M. Matsui, H. Matsuoka, S. Mitani, and K. Doi : *J. Magn. Magn. Mat.* **93**, 374 (1991).
- 13) S. Mitani, A. Kida, and M. Matsui : *J. Magn. Magn. Mat.* **126**, 76 (1993).
- 14) M. Matsui, S. Mitani, and A. Kida : *New Functionality Materials vol. C 125* Elsevier Sci. Pub, (1993).
- 15) M. Matsui, A. Kida, Y. Kamada, and Y. Yamada : *J. Magn. Soc. Jpn.* **19**, 767 (1995).
- 16) A. Kida and M. Matsui : *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1409 (1996).
- 17) Y. Yamada, K. Ohtani, and M. Matsui : to be published.
- 18) T. Asada and S. Blügel : *Phys. Rev. Lett.* **79**, 507 (1997).
- 19) Myron Bander and D. L. Mills : *Phys. Rev. B* **38**, 12015 (1988), **B 43**, 11527 (1991).