Co/Gd 多層膜におけるスピフロップ現象と膜面垂直磁気抵抗効果

Spin-Flop Behavior and Current-Perpendicular-to-Plane (CPP)

Magnetoresistance in Co/Gd Multilayers

名倉秀明・三谷誠司・嶋 敏之・高梨弘毅

東北大学金属材料研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

H. Nagura, S. Mitani, T. Shima, and K. Takanashi

Institute for Materials Research, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

Current-perpendicular-to-plane magnetoresistance (CPP-MR) was measured for ferrimagnetic Co/Gd multilayers, which have twisted spin structure accompanied by spin-flop transition. The influence of the twisted spin structure on the electronic transport was exclusively obtained, eliminating the effect of anisotropic magnetoresistance. MR curves showed a downturn around the spin-flop field, suggesting that the formation of the twisted spin structure leads to a negative resistance change. This is possibly caused by the GMR-like mechanism whereby the resistance decreases in the process of the spin structure change from antiparallel to parallel alignment between Co and Gd moments.

Key words: CPP-MR, spin-flop transition, twisted spin structure

1. はじめに

磁壁の内部のようなねじれたスピン構造が電気抵抗にどのように寄与するのかという問題は、近年ナノスケール磁性体におけるひとつのトピックスになっている。現在までにいくつかの実験がなされ^{1)~6)}、磁壁の導入によって磁性体中の伝導電子のスピンチャンネル間に混じり合いが生じ

Fig. 1 Schematic illustration of the twisted spin structure in a Co/Gd multilayer.

抵抗が増大するといったもの⁷⁾や、量子干渉効果によって抵抗が増大している磁性細線中に磁壁が入ると干渉が乱され抵抗が減少する⁸⁾などの機構が考えられているが、未だ統一した見解には至っていない。その一つの理由として、これらの研究は、強磁性細線中に磁壁を閉じこめて行われたものが多く、異方性磁気抵抗 (AMR) 効果との分離や詳細なスピン構造を考慮に入れた磁気抵抗の解析が困難であることが挙げられる。本研究では、スピフロップ挙動を示すとともにねじれたスピン構造が実現される遷移金属/希土類金属系人工格子である Co/Gd 多層膜を用いてねじれたスピン構造と磁気抵抗 (MR) 効果との関係を調べることを目的とした。Fig. 1 に Co/Gd 多層膜における界面付近のスピン構造の模式図を示す。本実験では、AMR の寄与を除去するために、膜面垂直方向に電流を流した場合 (Current-Perpendicular-to-Plane: CPP) の MR 測定を行った。CPP 測定を行うことにより、スピンと電流とのなす角を 90° と一定にすることができるため、理想的には AMR を除去することが可能となり、ねじれたスピン構造が電気抵抗に及ぼす寄与を明瞭に観測することができると期待される。また人工的な多層膜を使うことによって、ねじれの周期や角度を人工的に変化させることができ、さらにスピン構造を分子場モデルによる計算で予測することができるので、スピン構造と CPP-MR との関係を詳細に議論することができる。CPP-MR の予備的な測定結果はすでに文献 9 において報告したが、本論文ではスピン構造と CPP-MR とを比較して、両者の関係を考察する。

2. 実験方法

Fig. 2 (a) に作製した試料の模式図を示す。CPP 測定を行うために熱酸化 Si 基板上に上下電極を有する微小柱状の Co/Gd 多層膜を作製した。作製した Cr 下部電極上に Co (t_{Co} nm) / Gd (t_{Gd} nm) の多層膜を超高真空対応スパッタ装置を用いて、室温において総厚 1 μm になるように作製した。その後、集束イオンビーム加工装置 (FIB) を用いて、Co/Gd 多層膜部分を底面積 $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ の微小柱状の形状になるように微細加工を施した。Fig. 2 (b) に FIB によって加工された試料の走査イオン顕微鏡像を示す。さらに絶縁層として SiO_2 をスパッタした後、再び FIB 加工装置を用いて柱

状の多層膜上部の絶縁層を取り除き、上部電極 (Cr) を成膜した。

試料のMR効果は、超伝導マグネットを用いて ± 70 kOeの磁場を膜面内方向に印加し、4.2 Kにおいて測定した。また、磁気特性はSQUIDを用いて測定した。

3. 結果および考察

3.1 Co/Gd多層膜におけるCPP-MR測定結果

Fig. 3 (a) に Co (8.4 nm) /Gd (11.2 nm) 多層膜の磁化曲線を示す。磁化曲線より、7.5 kOe付近の磁場においてスピントロップ現象に伴う磁化の増加が見られた。Fig. 3 (b) に同じ試料の Current-in-plane (CIP) MR測定の結果を示す。スピントロップを起こす磁場 (H_{sf}) の近傍から、磁場と電流が垂直な場合の横磁気抵抗 ΔR_t と平行な場合の縦磁気抵抗 ΔR_l が急速に変化し、互いに交差する現象が見られる。これらの現象は、AMR効果によって説明されることがすでに報告されている¹⁰⁾。すなわち、スピントロップによる磁気モーメントの回転に伴い電流と磁気モーメントの相対角度が変化するためにこのようなMR曲線となる。次に Fig. 3 (c) に CPP-MR測定の結果を示す。CPP-MRの結果では、CIPとは異なった変化を示した。図中において○と●は、印加磁場を試料面内において 90° 変化させて測定した結果である。○と●のMR曲線の間には、ほとんど変化が見られない。よって、電流の面内方向成分の影響は無視することができ、AMRによる寄与はCPP測定を行うことにより取り除かれたと考えられる。また、CPP測定におけるMR曲線は、印加磁場の増加に伴って全体的に抵抗が減少している。これはGd単層膜のMR測定でも見られ、Gdが強制効果と思われる比較的大きな負のMR効果を示すためである。この図において重要なことは、MR曲線の勾配が H_{sf} 以上で急峻になり、 H_{sf} 付近でMR曲線に折れ曲がりが見られることである。すなわち、スピントロップ現象に伴うねじれたスピン構造への変化が負のMR効果を起こしている。

Fig. 4に、多層周期を様々に変化させた試料における (a) 磁化曲線と (b) MR曲線を示す。磁化曲線において、多層周期が短くなると H_{sf} は増加している。これは、周期が短く

Fig. 2 (a) Schematic illustration of the cross-sectional view of a sample structure for the CPP-MR measurement. (b) Scanning ion microscopy image of a pillar of a Co/Gd multilayer film.

なると単位体積あたりの界面の数が増加し、Co/Gd界面での反強磁性結合エネルギーも界面の数だけ増加するためである。またすべての試料において、 H_{sf} 付近にMR曲線の折れ曲がりが見られ、スピントロップ現象に伴い負のMR効果を起こしている。Co (5.2 nm) /Gd (6.4 nm) の試料では高磁場において抵抗が増加しているが、これは正常磁気抵抗効果の影響によるものと考えられる。

なお CPP-MR 測定における試料の全抵抗値は、 3Ω 程度である。この値には、Co/Gd多層膜部分の試料抵抗と上下のCr電極との間の接触抵抗が含まれており、双方を分離することは困難である。ここで、Co単層膜、Gd単層膜にお

Fig. 3 (a) Magnetization curve for a [Co (8.4 nm)/Gd (11.2 nm)] x 50 multilayer measured at 5.0 K. (b) Resistance changes ΔR in CIP geometry for a [Co (8.4 nm)/Gd (11.2 nm)] x 50 multilayer as a function of the applied magnetic field measured at 4.2 K. The initial resistance before applying the magnetic field is defined as $\Delta R = 0$; closed and open circles represent the data for the longitudinal (current // applied magnetic field) and transverse (current $\perp$ applied magnetic field) configurations, respectively. (c) Resistance changes ΔR in CPP geometry for a [Co (8.4 nm)/Gd (11.2 nm)] x 50 multilayer as a function of the applied magnetic field measured at 4.2 K. The initial resistance before applying the magnetic field is defined as $\Delta R = 0$; closed circles represent data with the magnetic field applied along a direction in the film plane, and open circles represent data with the magnetic field applied along another direction in the film plane, which is perpendicular to the direction for closed circles.

ける比抵抗の測定結果 ($\rho_{\text{Co}}=6\ \mu\Omega\cdot\text{cm}$, $\rho_{\text{Gd}}=130\ \mu\Omega\cdot\text{cm}$) を用いて, $1\ \mu\text{m}\times 2\ \mu\text{m}^2$ の形状の Co/Gd 多層膜の抵抗値を推定すると $0.17\ \Omega$ となる. 多層膜の場合には, これに界面抵抗が加わるが, 界面抵抗の寄与を考慮しても, 試料抵抗は全抵抗値に比べ桁程度小さく, 全抵抗値の大部分は電極との接触抵抗であることが示唆される. 実際に多層膜の総膜厚を変化させると, 全抵抗値は $3\pm 1\ \Omega$ 程度の範囲でばらつき, 系統的な変化は見られない. このような事情から, Fig. 3 (c) における CPP-MR 曲線では, 抵抗変化 ΔR を試料の抵抗値 R で割った MR 比ではなく, ΔR の値のみを示すことにした.

3.2 分子場モデルを用いて計算したスピン構造と CPP-MR との比較

Co/Gd のような長周期フェリ磁性を示す多層膜におけるスピン構造は分子場モデルを用いて計算することができ, 磁化曲線や CIP-MR の実験結果をよく説明できることがすでに報告されている^{10)~12)}. そこで本研究でも, Co/Gd 多層膜におけるスピン構造を分子場モデルを用いて計算し, 実験結果と比較検討することによって, 伝導電子に対するねじれたスピン構造の影響について考察する. 計算では, 試料を厚さ $2\ \text{\AA}$ の原子層の積み重ねとみなし, 各原子層内では磁気モーメン

Fig. 4 (a) Magnetization curves measured at 5.0 K. (b) CPP-MR curves measured at 4.2 K for Co (5.2 nm)/Gd (6.4 nm), Co (6.4 nm)/Gd (8.4 nm) and Co (8.4 nm)/Gd (11.2 nm) multilayers.

トが平行に揃っていると考え, 各原子層の磁化の方向を, 磁気エネルギー (交換エネルギー+ゼーマンエネルギー) を極小にする条件から計算した. Co および Gd の原子磁気モーメントは, それぞれ Co と Gd 単層膜の磁化測定より求めた値を用いた ($\mu_{\text{Co}}=1.62\ \mu_B$, $\mu_{\text{Gd}}=6.35\ \mu_B$). また, Co 層と Gd 層内の交換積分 $J_{\text{Co-Co}}$, $J_{\text{Gd-Gd}}$ は, それぞれバルクの値のキュリー温度 (Co: $T_c=1404\ \text{K}$, Gd: $T_c=293\ \text{K}$) から求めた値 ($J_{\text{Co-Co}}=4.45\times 10^{-14}\ \text{erg}$, $J_{\text{Gd-Gd}}=5.00\times 10^{-16}\ \text{erg}$) を用い, 界面の Co-Gd 層間の交換積分 $J_{\text{Co-Gd}}$ は, $J_{\text{Co-Co}}$ および $J_{\text{Gd-Gd}}$ の平均として $J_{\text{Co-Gd}}=-2.25\times 10^{-14}\ \text{erg}$ と仮定した. なお, $J_{\text{Co-Gd}}$ が $10^{-14}\ \text{erg}$ 程度のオーダーであるならば, 以下の計算結果は $J_{\text{Co-Gd}}$ の値にあまり強く依存しないことが分かっている.

[Co (8.4 nm) /Gd (11.2 nm)]_{×60} における磁化曲線の計算結果を, Fig. 5 に示す. 計算で得られた磁化曲線は, スピンフロップ磁場や全体的な振る舞いにおいて実験で得られた磁化曲線 (Fig. 3 (a)) と良い一致を示している.

Fig. 5 Calculated magnetization curves for Co (5.2 nm)/Gd (6.4 nm), Co (6.4 nm)/Gd (8.4 nm), and Co (8.4 nm)/Gd (11.2 nm) multilayers.

Fig. 6 Calculated distribution of the directions of magnetic moments in the Co (8.4 nm)/Gd (11.2 nm) multilayer. ϕ (ψ) is the angles between magnetic moments of Co (Gd) atomic layers and magnetic field. $\phi = 180^\circ$ ($\psi = 0$) means that Co (Gd) moments is antiparallel (parallel) to applied magnetic field.

次に計算で得られた $[\text{Co} (8.4 \text{ nm}) / \text{Gd} (11.2 \text{ nm})]_{\times 50}$ の多層膜における一周期分の Co 層および Gd 層内部のスピン構造を Fig. 6 に示す。図において縦軸は、Co 層および Gd 層の厚みに対応している。また横軸は、印加磁場の方向を 0° の方向とし、印加磁場と Co および Gd の磁気モーメントのなす角を各々 ϕ および ψ として表している。 H_{sf} (7.5 kOe) 以下においては、Gd の磁気モーメントは磁場方向と同じ 0° の方向に向いており、Co 層の磁気モーメントは反対の 180° の方向に向いている。スピントロップ現象が起きると、Co 層の磁気モーメントは磁場方向に向けて回転を始める。この時、Co, Gd 層の界面には反強磁性結合 ($J_{\text{Co-Gd}} < 0$) が働いているため界面における Gd の磁気モーメントは磁場方向と角度を持つようになるが、 $J_{\text{Gd-Gd}}$ は $J_{\text{Co-Co}}$ に比べ小さく Gd 層内部の磁気モーメントはゼーマンエネルギーの増加を抑えるために磁場方向に向こうとするため、結果として図のようなねじれたスピン構造をとるようになる。

次に計算で求めたスピン構造に基づいて、CPP-MR の測定結果について考察する。Fig. 6 に見られるように、スピントロップに伴い Gd 層の内部にスピンのねじれた構造が生じる。もし Gd 層内の電子散乱が CPP-MR に主たる寄与を及ぼしているならば、スピンのねじれは負の MR 効果をもたらしていることになる。スピンのねじれによる負の MR 効果の原因としては、既に述べたように量子干渉効果が考えられる⁸⁾ が、本実験における負の MR 効果は、100 K 程度の高温まで観測されることが分かっており、量子干渉効果と考えるのは困難である。負の MR 効果を説明するもう一つの可能性として、 $H < H_{\text{sf}}$ で完全な反平行状態であった Co 層と Gd 層の磁気モーメントが $H > H_{\text{sf}}$ で平行に揃っていく過程で Fe/Cr 人工格子などで見られる様な巨大磁気抵抗 (GMR) 効果が現れたと考えることができる。このような GMR 的なメカニズムであるならば、抵抗変化 ΔR は Co 層と Gd 層の磁気モーメントの方向 ϕ_{Co} , ψ_{Gd} を用いて

$$\Delta R = N \Delta R_{\text{Co/Gd}} \left\{ \sin^2((\phi_{\text{Gd}} - \phi_{\text{Co}})/2) - 1 \right\}, \quad (1)$$

と書くことができる。ここで $\Delta R_{\text{Co/Gd}}$ は、Co 層と Gd 層の磁気モーメントが完全に反平行な場合と平行な場合の抵抗差である。また N は、Co 層および Gd 層の積層数である。ここで Co/Gd 多層膜の平均自由行程が一原子層間程度に短い ($\sim$ 数 Å) と考えられることから、Co-Gd 層間のスピンの依存した電子散乱は界面原子層のみで生じると仮定すると、Fig. 6 に示したスピン構造の計算から $H=55 \text{ kOe}$ で $\psi_{\text{Gd}} - \phi_{\text{Co}} = 178.5^\circ$ と見積もられる。また実験における CPP-MR 曲線 (Fig. 3 (c)) より Gd による負の磁気抵抗効果を差し引いてスピントロップ現象にともなう抵抗変化を見積もると、55 kOe において $\Delta R \sim -0.001 \Omega$ となる。そこで以上の値を式 (1) に代入すると、 $N \Delta R_{\text{Co/Gd}} \sim 4 \Omega$ となる。しかし、すでに述べたように試料全体の抵抗が約 3Ω であり、実際の試料抵抗はさらに一桁程度小さいと考えられるので、 $N \Delta R_{\text{Co/Gd}}$ がそれよりも大きくなるのは、物理的に意味がない。このことは言い換えれば 55 kOe 程度の測定磁場範囲では界面で接する Co 原子層と

Gd 原子層の磁気モーメントは、反平行 ($\psi_{\text{Gd}} - \phi_{\text{Co}} = 180^\circ$) に極めて近く、GMR 的なメカニズムによる電子散乱が界面原子層でのみ生じると考えるのは無理があることを示している。もし、式 (1) の ψ_{Gd} , ϕ_{Co} にそれぞれ Co 層および Gd 層内部の最も磁場方向に近い値を用いれば、 $\psi_{\text{Gd}} = 3.09^\circ$, $\phi_{\text{Co}} = 42.03^\circ$ であり $N \Delta R_{\text{Co/Gd}} = 0.0012 \Omega$ となり、物理的には矛盾しない。従って GMR 的なメカニズムを考えた場合、界面原子層のみでなく、界面からある程度離れた Co 層内部から Gd 層内部までのスピン構造に依存した電子散乱が重要であると考えられる。CPP-MR を支配する特性長は、平均自由行程よりもむしろスピン拡散長であると言われており¹³⁾、スピン拡散長は 10 nm のオーダーであること^{14), 15)} を考えれば、以上の考察は妥当であろう。以上は、Co 層と Gd 層間の GMR 的な効果のみを考えた考察であり、各層がねじれたスピン構造を含みつつも GMR 的な効果により、実験結果が説明可能であることを述べた。しかし、実際には Gd 層内部でのねじれたスピン構造による電子散乱への寄与も重量して起きていると考えられる。この Gd 層内部でのねじれたスピン構造は、正の寄与⁷⁾を有すると考えられるが、負の寄与である可能性も否定できない¹⁶⁾。層間の GMR 的な効果を分離して、より明確な議論を行うためには、今後 Co 層厚および Gd 層厚を変化させたときの CPP-MR の系統的変化を調べる必要がある。

4. まとめ

スピントロップとともにねじれたスピン構造をもつ Co/Gd 多層膜の CPP-MR の測定を行うことによって、電気伝導とねじれたスピン構造の関係を調べた。CPP-MR 測定を行うことにより AMR の効果を取り除いたねじれたスピン構造の影響を見ることができた。スピントロップ磁場付近において CPP-MR 曲線に負の MR 効果を示す折れ曲がりが見られた。この原因として、互いに反平行に向いていた Co と Gd の磁気モーメントがスピントロップ現象にともなって平行に揃う過程において GMR 的な効果が現れたことが考えられる。

文 献

- 1) J. F. Gregg, W. Allen, K. Ounadjela, M. Viret, M. Hehn, S. M. Thompson, and J. M. D. Coey: *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 1580 (1996).
- 2) A. D. Kent, U. Rüdiger, J. Yu, L. Thomas, and S. S. P. Parkin: *J. Appl. Phys.*, **85**, 5243 (1999).
- 3) T. Taniyama, I. Nakatani, H. Yanagihara, and E. Kita: *J. Magn. Magn. Mater.*, **77**, 196 (1999).
- 4) Y. Otani, K. Fukamichi, O. Kitakami, Y. Shimada, B. Pannetier, J. P. Nozieres, T. Matuda, and A. Tonomura: *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **475**, 215 (1997).
- 5) K. Mibu, T. Nagahama, T. Shinjo, and T. Ono: *Phys. Rev. B*, **58**, 6442 (1998).
- 6) J.-E. Wegrowe, A. Comment, Y. Jaccard, J.-Ph. Ansermet, N. M. Demsey, and J.-P. Nozieres: *Phys. Rev. B*, **61**, 12216 (2000).

- 7) P. M. Levy, and S. Zhang: *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 5110 (1997).
- 8) G. Tatara, and H. Fukuyama: *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3773 (1997).
- 9) H. Nagura, K. Takanashi, S. Mitani, K. Saito, and T. Shima: *J. Magn. Magn. Mater.*, in press.
- 10) K. Takanashi, Y. Kamiguchi, H. Fujimori, and M. Motokawa: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **61**, 3721 (1992).
- 11) R. E. Camley: *Phys. Rev. B*, **39**, 12316 (1989).
- 12) M. Motokawa, and H. Dohnomae: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60**, 1355 (1991).
- 13) T. Valet, and A. Fert: *Phys. Rev. B*, **48**, 7099 (1993).
- 14) L. Piraux, S. Dubois, C. Marchal, J. M. Beuken, L. Filipozzi, J. F. Despres, K. Ounadjela, and A. Fert: *J. Magn. Magn. Mater.*, **156**, 317 (1996).
- 15) B. Doudin, A. Blondel, and J.-Ph. Ansermet: *J. Appl. Phys.*, **79**, 6090 (1996).
- 16) R. P. van Gorkom, A. Brataas, and G. E. W. Bauer: *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 4401 (1999).

2001年3月10日受理, 2002年1月17日採録