金属人工格子の巨大磁気抵抗効果の理論

前 川 禎 通* 井 上 順一郎**

1. は じ め に

磁性体は多様な伝導現象を示す。磁性を担うスピンと電荷の流れである電流とのからみ合いに様々な量子現象が現れるからである。磁性体では電子の散乱はそのスピンに依存している。そのため、自発磁化が存在する場合、上向きスピンの電子と下向きスピンの電子は違った振る舞いをする。しかし、それぞれの電子を別々に取り出すことは決して容易ではない。

伝導に預かる電子をその各スピン成分に分けて取り出すことにより、磁気抵抗素子を作る努力が多くのグループによりなされてきた。強磁性トンネル接合はその第一の成功例であろう⁽¹⁾。また、1988年に見出された(Fe/Cr)人工格子の巨大磁気抵抗効果⁽²⁾は人工格子作製技術の進歩と相まって、最近精力的に研究が進められている。例えば、0.9 nmの厚さのCu薄膜と、1.5 nmの厚さのCo薄膜を交互に積み重ねた人工格子では、Cuをはさんで各Co薄膜の磁化がお互いに反平行になり反強磁性的になっている。この人工格子に398 kA/m程度の磁場を加えると各磁化は磁場の方向にそろい強磁性を示す。この時、人工格子の電気抵抗を測定すると、磁場を加えない反強磁性状態に比べて電気抵抗は半分になる。このような大きな負の磁気抵抗(巨大磁気抵抗)は磁場の方向によらず、各Co薄膜の磁化が強磁性的にそろっているか反強磁性的かに依存するのみである。

以下では、人工格子の巨大磁気抵抗の原因を明らかにする。また、他の伝導現象についても述べたい。

2. 磁性不純物と電気抵抗

図1(a)はAl中の遷移金属不純物が与える電気抵抗を示している⁽³⁾。図で見えるようにTiから不純物の原子番号が増加すると不純物による抵抗が増加しCrでピークを示す。そしてさらに原子番号が増加すると抵抗は減少する。これは不純物原子の3d軌道のエネルギー準位が原子番号の増加とともに下がって行き、CrでAlのフェルミ準位とほぼ一致することによる。不純物の3d準位がフェルミ準位の付近にくるとフェルミ面が大きく乱される。電気伝導はフェルミ面上の電子が担っているため、このようなフェルミ面の乱れは電気抵抗を大きくする結果となる。

図1(b)はCu中の遷移金属不純物が与える電気抵抗を示している⁽³⁾。この場合はVとFeのところでピークが現れ、明らかにAlの場合とは違う。Cu中の遷移金属不純物の多くは磁気モーメントを持ち、その3d軌道は交換ポ

図1 (a) Al中の遷移金属不純物による残留抵抗⁽³⁾.
(b) Cu中の遷移金属不純物による残留抵抗⁽³⁾.

* 名古屋大学教授；工学部応用物理学科

** 名古屋大学助教授；工学部応用物理学科

Theory of Giant Magnetoresistance in Metallic Superlattices; Sadamichi Maekawa, Jun-ichiro Inoue (Department of Applied Physics, Faculty of Engineering, Nagoya University, Nagoya)

Keywords: *metallic superlattice, giant magnetoresistance, random exchange potentials, thermoelectric power, thermal conductivity, exchange coupling, virtual bound state*

1992年5月18日受理

図2 Cu中のFe不純物の3d準位の模型図.

テンシャルのためスピン分裂を起こしている. 今, 不純物イオンが上向きスピンの状態にあるとしよう. 図2はFeイオンの場合の電子構造の模型図である. すなわち, Feの上向きスピンの3d準位はCuのフェルミ準位の下にあるが, 下向きスピンの準位はフェルミ準位の近傍にあり, 半分近くが空の状態になっている. このような3d準位の分裂のため, 原子番号の増加によりVとFeで3d準位がフェルミ面をよぎる.

このような遷移金属不純物に対する考え方はFriedel以来磁性合金を理解するための重要な出発点となってきた. 不純物の3d準位をvirtual bound stateと呼ぶ. また, このように3d準位をスピン分裂させ磁性を与える交換ポテンシャルの原因は電子相関である.

さて, 図2の場合, 上向きスピンの3d準位はフェルミ面の下にもぐっておりフェルミ面にはほとんど影響を与えないが, 下向きスピンの準位はフェルミ面の近傍にあり, フェルミ面を大きく乱している. したがって, 上向きスピンの伝導電子に比べ, 下向きスピンの伝導電子は大きな抵抗を持つことになる. 言い換えると, この場合伝導を担うのは主として上向きスピンの電子である.

ここで注意すべきことは, 磁性合金では, 磁性不純物のスピンを図2のように固定することは容易でなく, スピン揺動(近藤効果)を正しく取り入れる必要がある. また, スピンの方向を固定できたとしても, 伝導電子のスピンを分けて測定することは可能ではない. しかし, このような問題を克服した1つの例が人工格子の巨大磁気抵抗であると言える. 次に, 人工格子の電気抵抗を考えよう.

3. 金属人工格子の磁気抵抗

図3はCo薄膜の磁化が反強磁性的に配列しているときの(Co/Cu)人工格子の模型図である. この人工格子の伝導の主な担い手はCuの4s電子であると考えられる. そして電気抵抗の主な原因はCo/Cu界面の乱れである. 今, 界面の乱れのため図3のように, Cu中にCo原子が混じり込んだとしよう. このCo原子をA, Bとする. A原子はCo薄膜と接しているので上向きスピンの状態にある.

図3 (Co/Cu)人工格子の模型図. A, BはCu中のCo不純物を示す.

そのため, 図2で見たように, A原子はCuの下向きスピンのフェルミ面を乱し電気抵抗の原因となる.

次にB原子を考えよう. B原子は下向きスピンの状態にあり下向きスピンの3d準位はフェルミ面の下にあり, 上向きスピンの3d準位がフェルミ面近傍にある. そのため, B原子は上向きスピンのフェルミ面を乱す. したがって, 各Co薄膜の磁化が反強磁性状態であると, 界面で乱れたCo原子によりCuの上下両スピンのフェルミ面がともに乱される.

この人工格子に磁場を加えて磁化が上向きに強磁性的にそろったとしよう. この場合, 図3のB原子のスピンの上向きになり, B原子はA原子と同じく下向きスピンのフェルミ面を乱し, 上向きスピンのフェルミ面をあまり乱さないことになる. したがって, 下向きスピンの伝導電子は比較的自由に伝導に寄与することができ, 電気抵抗は小さくなる. 明らかに磁場で磁化の方向をそろえることにより, 電気伝導性が良くなったわけであり, 負の磁気抵抗効果である.

今, 磁場を加えない反強磁性状態の電気抵抗を ρ_{AF} , 磁場により強磁性的にそろった状態の電気抵抗を ρ_F , その差を $\Delta\rho = \rho_{AF} - \rho_F$ とする. 図4は(遷移金属/Cu)人工格子の磁気抵抗比 $(\Delta\rho/\rho_{AF})$ およびCu中の遷移金属不純物の持つ平均磁気モーメントの大きさ(m_i)を遷移金属の種類(または3d電子数, n_d)の関数として求めたものである⁽⁴⁾⁽⁵⁾. Feのところで曲線に飛びがあるのはその右と左で用いたパラメータの値が違うことによる. 詳しくは文献(5)にゆずるが, このような物質依存性は3d準位とフェルミ面の相対的な位置の変化によっている. また, 図4で見るように(Co/Cu)人工格子よりもCoFe合金とCuとからなる人工格子の方が磁気抵抗効果が大きいことが予想される. 実際, 最近の実験⁽⁶⁾⁽⁷⁾でこのことが見い出されている.

図4 (遷移金属/Cu)人工格子の磁気抵抗効果 $\Delta\rho/\rho_{AF}$ およびCu中の磁性不純物の平均磁気モーメントの計算結果⁽⁵⁾。

なお、図4の計算では磁気散乱以外の散乱を無視した。不純物や格子振動による散乱は電気抵抗を大きくし、磁気散乱の効果をマスクしてしまう。高温では、格子振動による散乱により磁気抵抗は小さくなる。また、Cu薄膜の膜厚を増すと、結晶粒界や格子欠陥等による非磁氣的散乱が、界面における磁気散乱より相対的に大きくなり、磁気抵抗効果は小さくなると考えられる。非磁氣的散乱による抵抗への寄与がCu薄膜の厚さに比例して増加すると、(Co/Cu)人工格子に対し、磁気抵抗比のCu膜厚(d)依存性を計算した結果を図5に示す⁽⁵⁾。細い実線は、実験データ(黒丸)⁽⁸⁾をつないだものであり、磁気抵抗比が小さくな

図5 (Co/Cu)人工格子における、磁気抵抗比のCu膜厚依存性。太い実線が計算値⁽⁵⁾、黒丸が実験値⁽⁸⁾であり、細い実線はそれらをつないだものである。破線の説明は本文を参照のこと。磁気抵抗比は $\Delta\rho/\rho_F$ と定義されていることに注意。

っているところは、Coの磁化が、強磁性配列している領域である。すべての d で反強磁性配列が実現しているとすると、実験では破線のような結果が期待される。太い実線が(Co/Cu)の $\Delta\rho/\rho_{AF}$ の計算値を用いた計算結果であり、 $d=0.9$ nmで実験結果と一致するようにパラメータの値を調節してある。計算結果と、破線で示される実験結果とは良く一致している。

金属人工格子の作製条件によって、界面における磁気散乱とそれ以外の非磁氣的散乱の割合は変化し得る。最近、界面の乱れが増すと、磁気抵抗比が増加するという実験⁽⁹⁾と、その逆の結果を示すもの⁽¹⁰⁾とが、報告されている。作製条件によって、磁気散乱と非磁氣的散乱の割合がどう変化するか、明らかにする必要がある。大きな磁気抵抗効果を得るためには、磁気散乱以外の散乱をできるだけ抑えることが望ましいのは言うまでもない。

4. 金属人工格子の熱起電力と熱伝導

上に述べたように、人工格子の磁気抵抗効果は界面での伝導電子の磁気散乱による。したがって、他の伝導現象にも大きな磁場効果が期待される。

熱起電力(S)はその1つである。熱起電力は電子の電荷を e (<0)、温度を T とすると次のように表される、

$$S = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e} T \left[\frac{\partial \ln(\rho^{-1}(E_F))}{\partial E_F} \right] \quad (1)$$

したがって、人工格子の磁化の配列の変化が熱起電力にも影響を与える。図6は(遷移金属/Cu)人工格子の熱起電力の磁化の配列による変化の理論値である。横軸は遷移金属の種類(または $3d$ 電子の数)を示している。Feの近傍で曲線に飛びがあるのは図4と同じく用いたパラメータの値の違いによる。

最近、熱起電力に対する磁場効果の実験が(Co/Cu/NiFe/Cu)、(Co/Cu)、(Fe/Cu)および(Fe/Cr)人工格子で

図6 (遷移金属/Cu)人工格子の熱起電力の、強磁性状態と反強磁性状態の差の計算結果⁽⁵⁾。

行われている⁽¹¹⁾⁻⁽¹³⁾。熱起電力の実験結果は、式(1)同様はば T に比例している。また、図 6 に示した熱起電力の磁場変化の大きさも、実験値と同程度になっている。しかし、その磁場変化の符号が実験値と理論値とで食い違っている。実験値は、(Co/Cu)、(Co/Cu/NiFe/Cu)、(Fe/Cu)とも負の磁場変化を示しているが、理論値では、(Fe/Cu)は負、(Co/Cu)は正の磁場変化を示している。より詳細な電子状態が重要なのか、別の散乱機構が必要なのか今のところ明らかではない。さらに詳しい研究が必要である。

熱伝導度(κ)は Wiedemann-Franz の法則より次のように書ける、

$$\kappa = \frac{LT}{\rho} \quad (2)$$

ここで、 $L = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2}$ 。したがって、熱伝導度にも大きな磁気効果が予想される。実験的研究が望まれる。

5. お わ り に

金属人工格子の巨大磁気抵抗効果について(遷移金属/Cu)人工格子を取り上げて解説した。(Fe/Cr)人工格子のように、非磁性薄膜が遷移金属である場合にも、界面でのランダムな交換ポテンシャルを用いて議論できる。ただし、この系の場合には、(Co/Cu)人工格子と違って、Fe 薄膜中に混じり込んだ Cr 原子および Cr 薄膜中に混じり込んだ Fe 原子両方による散乱を考える必要がある。詳しくは文献⁽⁴⁾(14)(15)を参照されたい。

巨大磁気抵抗効果を得る上で重要な要素は、磁性薄膜間の磁気相互作用である。厚さ d の理想的な非磁性金属をはさんだ 2 枚の強磁性体の間には、次の交換相互作用が働くことが知られている。

$$J \propto \frac{\sin(2k_F d)}{d^2}, \quad (3)$$

ここで k_F は非磁性金属のフェルミ波数である。普通 $k_F \sim 15 \text{ nm}^{-1}$ であり、交換相互作用は 0.2 nm 程度の周期で強磁性と反強磁性の間を振動する。実際、注意深く作製された Fe/Mo/Fe⁽¹⁶⁾ および Fe/Cr/Fe⁽¹⁷⁾ 三層膜では、このよ

うな交換相互作用の振動が観測されている。ところが、巨大磁気抵抗効果の測定用に作製された多層の人工格子では、交換相互作用の振動の周期は $1 \sim 2 \text{ nm}$ と非常に長い。したがって、交換相互作用(J)はむしろ特徴的な波数 $K \sim 1.5 \sim 3 \text{ nm}^{-1}$ を用いて次式で表される。

$$J \propto \frac{\sin(2Kd)}{d^{1-2}}, \quad (4)$$

巨大磁気抵抗の測定に用いられる多層の人工格子では、界面は原子層のオーダーで乱れていると考えられる⁽⁹⁾。そのため式(3)で表される短い周期の振動は、乱れのために打ち消されている可能性がある。しかし、式(4)の交換相互作用の機構が界面の乱れによるのか、あるいは他の原因によるのかはまだ明らかではない。この交換相互作用の解明と、それによる磁性と伝導に関する新たな発展を期待したい。

文 献

- (1) 例えば、前川禎通：固体物理，**15**(1980)，171。
- (2) M. N. Baibich *et al.*: Phys. Rev. Lett., **61**(1988)，2472。
- (3) See, for example C. Kittel: *Quantum Theory of Solids*, John Wiley & Sons, Inc., (1963)。
- (4) J. Inoue, S. Maekawa: Prog. Theor. Phys. Suppl., **106**(1991)，187。
- (5) J. Inoue, H. Itoh and S. Maekawa: J. Phys. Soc. Jpn., **61**(1992)，1149。
- (6) Y. Saito and K. Inomata: Jpn. J. Appl. Phys., **30**(1991)，L1773。
- (7) N. Kataoka *et al.*: to be published。
- (8) D. H. Mosca *et al.*: J. Mag. Mag. Mater., **94**(1991)，L1。
- (9) E. E. Fullerton *et al.*: Phys. Rev. Lett., **68**(1992)，859。
- (10) K. Takanashi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn., **61**(1992)，1169。
- (11) J. Sakurai *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn., **60**(1991)，2522 and to be published。
- (12) M. J. Conover *et al.*: J. Mag. Mag. Mater., **102**(1991)，L5。
- (13) L. Piraux *et al.*: to be published。
- (14) J. Inoue, A. Oguri and S. Maekawa: J. Phys. Soc. Jpn., **60**(1991)，376。
- (15) J. Inoue and S. Maekawa：日本応用磁気学会誌掲載予定，H. Itoh, J. Inoue and S. Maekawa, to be published。
- (16) Z. Q. Qiu *et al.*: Phys. Rev. Lett., **68**(1992)，1398。
- (17) J. Unguris *et al.*: Phys. Rev. Lett., **67**(1991)，140; S. T. Purcell *et al.*: Phys. Rev. Lett., **67**(1991)，903。