

強磁性 TM-Al-O(TM=Fe, Co)グラニューラー膜の電気抵抗

金属材料研究所/東北大極低温科学センター

中村慎太郎

(nakamura@imr.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

TM-Al-O(TM=Fe, Co)グラニューラー膜は絶縁体であるAl-Oのマトリックスの中に平均直径20Å程度のFeまたはCoの強磁性金属粒子(グラニューラー)が散在する磁性膜である。特にCo-Al-O膜は詳しく研究されており、Co濃度が60at.%程度以下の場合には磁性は超常磁性を示す。超常磁性体では磁場のないときはそれぞれの強磁性グラニューラーの磁化がバラバラの方向を向いているため、伝導電子のトンネルが起こりにくく電気抵抗は大きい。磁場をかけるとグラニューラーの磁化の方向が揃い電気抵抗は減少する。このため、超常磁性Co-Al-Oグラニューラー膜では巨大磁気抵抗(GMR)が観測される。[1] 超常磁性膜における電気伝導はグラニューラーの帯電によるクーロンギャップに電子の運動エネルギーが打ち勝つことによって起こるので、零磁場での電気抵抗は指数関数的な温度変化を示し、低温で絶縁体となる。[2] これに対してCo濃度がおおむね70at.%よりも高い場合はCo-Al-O膜は金属的な伝導を示し、グラニューラー間の相互作用によって強磁性体となる。ただし、金属的な膜でも抵抗の絶対値は純粋なCoよりもはるかに大きく、Co濃度に敏感に変化する。強磁性Co-Al-Oグラニューラー膜は高抵抗で(小型化できる)温度変化が小さいことから高周波用の抵抗素子として興味もたれている。[3]

強磁性TM-Al-O(TM=Fe, Co)膜は超常磁性膜とは異なり、GMRのような顕著な現象が観測されないので、基礎物性については超常磁性膜ほど詳しく研究されてこなかったように思われる。だが、いくつかのおもしろそうな現象も観測される。例えば、

近年強磁性TM-Al-O(TM=Fe, Co)膜のブリルアン散乱が石巻専修大の吉原らによって行われ、長波長の強磁性スピン波による散乱スペクトルが観測された。[4, 5] 観測されたスピン波の波長は3000Å程度で、グラニューラーの平均直径20Åよりもはるかに長い。マトリックス中に乱雑に分布する強磁性グラニューラーをいくつもまたいでスピン波が熱励起されていることになる。吉原らはブリルアン散乱から求めたグラニューラー間の有効交換磁場 H_E と電気抵抗 R の絶対値の間に $H_E \propto R^{-2}$ の関係があると報告している。[5] これは電気抵抗と磁性との間に密接な関係があることを示唆している。また、強磁性膜のなかでも比較的超常磁性に近いTM濃度の膜の中には低温に向かって対数発散的な電気抵抗の温度変化を示すものがあることも報告されている。[3] 筆者らはとりあえずさまざまな組成の強磁性TM-Al-O(TM=Fe, Co)グラニューラー膜の電気抵抗の温度変化を系統的に測ってみることにした。

2. 実験結果

測定した膜はすべて財団法人電気磁気材料研究所の大沼繁弘博士、藤森啓安博士によって製作されたものである。成膜法は O_2+Ar 雰囲気中の反応スパッタ法である。[6] 基板はガラスで膜厚は1-2 μm である。電気抵抗の測定は一般的なdc四端子法で行った。端子の接着には銀ペーストもしくはインジウムを用いた。

まず、Fe-Al-O膜の電気抵抗の温度変化を見てみよう。4-150Kの温度領域について横軸を温度の2乗にしてプロットしてみたのが図1である。図のように電気抵抗の温度変化は直線になる。つま

りこの温度領域では温度の2乗に比例した電気抵抗の項があることがわかる。強磁性体では熱励起された長波長のスピン波による電子の散乱によって低温で温度の2乗に比例した電気抵抗が生じることがわかっているため、[7-9] 観測された電気抵抗の温度変化はスピン波散乱によるものと解釈できる。ブリルアン散乱の結果はグラニューラー膜の乱雑な空間的構造にも関わらずスピン波が励起されていることを示していたが、電気抵抗の温度変化もスピン波励起を支持する結果となった。同様な電気抵抗の振る舞いは一部の強磁性Co-Al-Oグラニューラー膜でも観測された。

強磁性TM-Al-Oグラニューラー膜の電気抵抗 T^2 項の係数を求めてみると、純粋なFeやCoに比べて2桁から3桁大きくなっており、TM濃度が低くなるほど T^2 項の係数は大きくなる。[10] このため強磁性グラニューラー膜ではスピン波散乱による寄与が顕著に現れる。

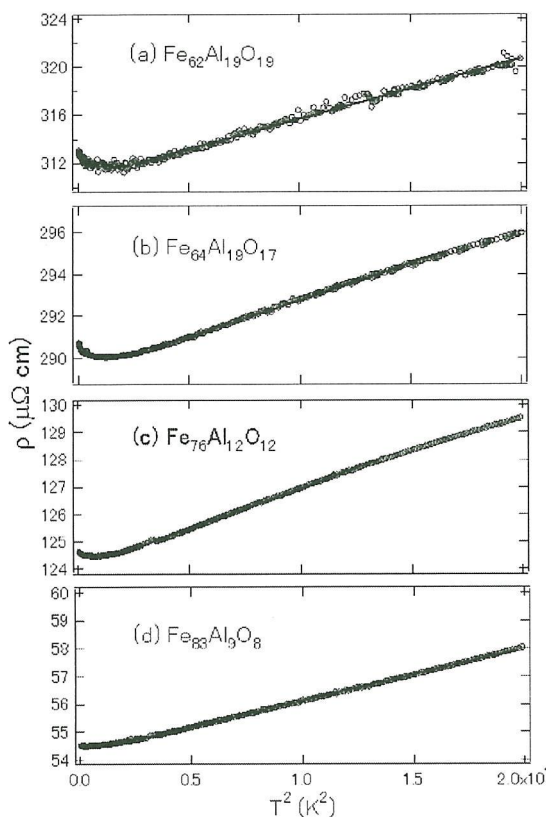


図1. Fe-Al-Oグラニューラー膜の電気抵抗。Fe濃度はそれぞれ(a)62, (b)64, (c)76, (d)83 at. %。横軸は温度の2乗でプロットしてい

る。[10]

図1を見ると最低温の付近で電気抵抗の温度変化が T^2 からずれているように見える。この部分を拡大して温度を対数プロットしたのが図2である。電気抵抗が低温に向かって対数発散していることがわかる。図中の実線は直線によるフィットである。スピン波による影響が小さくなる低温では電気抵抗の T^2 項は小さくなるが、対数発散項が相対的に大きくなるので $-\log T$ の振る舞いがはっきり見えてくる。また、 $-\log T$ 項の大きさもFeの組成に敏感でFeの濃度が低下すると、すなわち超常磁性の方向に向かって組成が振れると、急激に大きくなる。

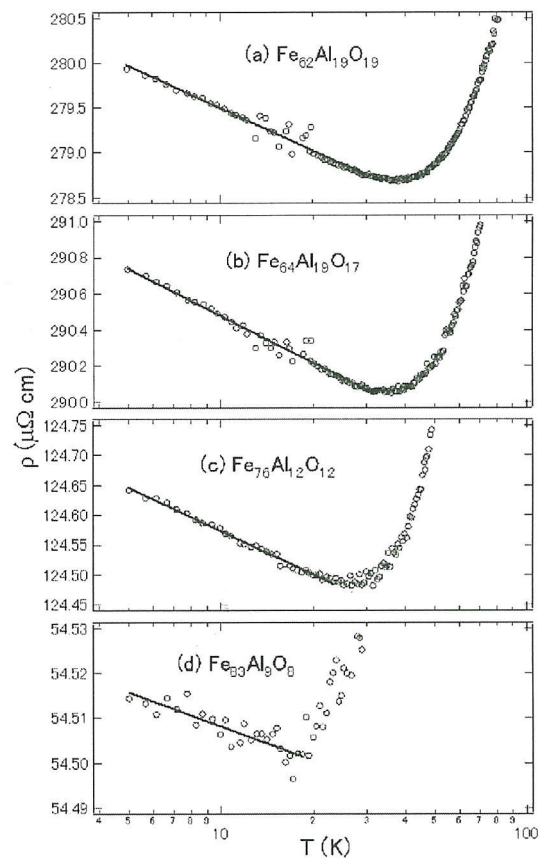


図2. Fe-Al-Oグラニューラー膜の電気抵抗の低温領域拡大図。横軸は対数プロットしてある。(a)62, (b)64, (c)76, (d)83 at. %。実線は直線によるフィット。[10]

同様の対数発散項は強磁性Co-Al-Oグラニューラ

一膜でも観測された。図3にその一例を示す。横軸は温度で対数プロットされている。 $\text{Co}_{63}\text{Al}_{13}\text{O}_{24}$ は強磁性膜であるが、比較的超常磁性膜に近い領域の組成を持った膜で、電気抵抗は40 Kくらいから低温まできれいに対数変化を示す。この膜では $-\log T$ 項が大きいので、スピン波の散乱による寄与は覆い隠されてしまっている。筆者らが調べた強磁性TM-Al-O (TM=Fe, Co) グラニューラー膜ではすべての膜でこの対数発散が観測された。このことからするとこの振る舞いは強磁性のグラニューラー膜にかなり普遍的に起こる現象なのではないかと思われる。電気抵抗に對数発散が生じる原因としては、1 つには二次元のアンダーソン局在が考えられる。[12] しかし、膜の厚さが1-2 μm とグラニューラーの平均直径20 \AA に比べてはるかに大きいことから二次元のアンダーソン局在の可能性は低いのではないかと考えている。他の可能性として近藤効果が考えられる。[13] しかし、通常近藤効果は3d電子系では磁性イオン濃度が極めて低い領域でしか観測されないし、筆者らが調べた膜は強磁性秩序が存在する膜なので近藤効果と強磁性が共存するののかという疑問もある。

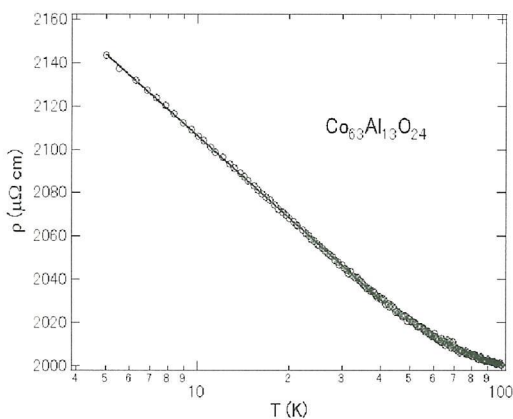


図3. 強磁性 $\text{Co}_{63}\text{Al}_{13}\text{O}_{24}$ グラニューラー膜の電気抵抗の温度変化。横軸の温度は対数プロットしている。[10]

図3に示した $\text{Co}_{63}\text{Al}_{13}\text{O}_{24}$ の4.2 Kにおける磁気抵抗を測定した結果が図4である。磁場は膜に対して平行にかけられており、磁場を0→8→8→0 Tと挿引して測定している。磁気履歴はこのスケ-

ルで見るとほとんど見えないほど小さく、単調な負の磁気抵抗が観測された。ただし、変化量は0Tから8Tまでで0.25%程度である。図3の温度変化による電気抵抗の変化は2%程度あるからそれに比べるとかなり小さい。 $\text{Co}_{63}\text{Al}_{13}\text{O}_{24}$ の電気抵抗の $\log T$ 項は磁場にほとんど影響を受けないといえると思う。超常磁性体で観測されるGMRでも負の磁気抵抗が観測されるが、図4の磁気抵抗は磁場に対する変化の様子が大きく異なる。そもそも変化量がGMRの場合は数十%の変化量であるのに対し格段に変化量が少ないし、特徴的なことは高磁場領域で線型な磁場変化を示すことである。[10, 11] $\text{Co}_{63}\text{Al}_{13}\text{O}_{24}$ の低温における保持力はたかだか200 Oeくらいであるが、保持力の数百倍の磁場をかけても線型の負の磁気抵抗を示す。

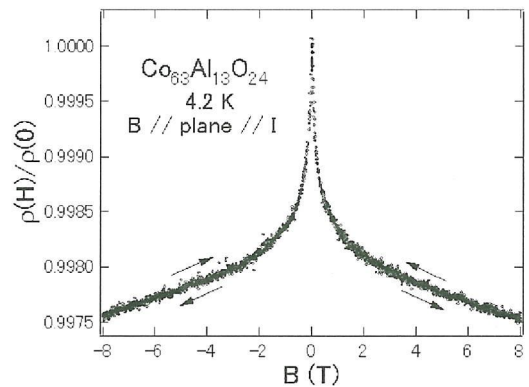


図4. $\text{Co}_{63}\text{Al}_{13}\text{O}_{24}$ の磁気抵抗。温度は4.2 K、磁場は膜に平行にかけられている。電流は磁場と平行である。0→8→8→0 Tと磁場を変化させて測定している。[10]

3. まとめ

強磁性TM-Al-Oグラニューラー膜という構造不規則系の電気抵抗を測定してみた。スピン波の寄与という意味では、あたかも純粋な強磁性体であるかのように電気抵抗に T^2 の振る舞いが観測された。スピン波が死んでしまう、より低温領域では、測定した全ての強磁性グラニューラー膜で近藤効果的な $-\log T$ 依存性が観測された。ただし、磁場による効果はかなり小さなものであった。 $\log T$ 項の原因はまだわからない。また、負の磁場に対し

て線型な縦磁気抵抗が保持力の数百倍の磁場領域まで観測されたが、この原因もまだわからない。ただ、原因はわからないながらも観測される現象は構造の不規則さにもかかわらず案外単純であるように思う。今後、より広い組成範囲での低温、強磁場での測定が必要であろう。特に対数発散する電気抵抗が低温極限でどういう振る舞いを示すのかは興味のあるところである。

謝辞

本稿は東北大学極低温科学センターの野島勉准教授、石巻専修大学の吉原章教授、財団法人電気磁気材料研究所の大沼繁弘博士、藤森啓安博士(東北大学名誉教授)、東北大学理学研究科大学院生の岩下貴保氏との共同研究について紹介したものである(詳細は文献10, 11を参照されたい)。共同研究者の諸氏に感謝する。また、藤森先生にはかつてセンター長として極低温科学センターの運営にご尽力いただいた。あわせて感謝します。

参考文献

- [1] S. Mitani, H. Fujimori, S. Ohnuma: *J. Mag. Mag. Mater.* 165 (1997) 141.
- [2] S. Mitani *et al.*: *Phy. Rev. Lett.* 81 (1998) 2799.
- [3] H. Fujimori *et al.*: *Mater. Sci. Eng. A* 181-182 (1994) 897.
- [4] A. Yoshihara *et al.*: *J. Mag. Mag. Mater.* 268 (2004) 257.
- [5] A. Yoshihara *et al.*: *J. Phys. Soc. Jpn.* 77 (2008) 094704.
- [6] S. Mitani, H. Fujimori, S. Ohnuma: *J. Mag. Mag. Mater.* 165 (1997) 141.
- [7] T. Kasuya: *Prog. Theo. Phys.* 22 (1959) 227.
- [8] I. Mannari: *Prog. Theo. Phys.* 22 (1959) 335.
- [9] G. K. White and S. B. Woods: *Phil. Trans. Roy. Soc. London A* 251 (1959) 35.
- [10] S. Nakamura *et al.*: *J. Phys. Soc. Jpn.* 78 (2009) 074708.
- [11] S. Nakamura *et al.*: *J. Phys. (Conf. Seri.)* in press.

[12] P. W. Anderson *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* 43 (1979) 718.

[13] J. Kondo: *Prog. Theo. Phys.* 32 (1964) 37.