

FeRh(Pd)合金における反強磁性－強磁性転移ダイナミクスの電氣的検出

物質系専攻 47-156048 松本 健太

指導教員：大谷 義近（教授）

キーワード：スピントロニクス、磁気相転移、磁性薄膜、微細加工

1. 本研究の背景および目的

細線化された FeRh(Pd)合金の反強磁性－強磁性転移での磁気状態を明らかにすることを目標とし、電気測定による転移ダイナミクスの検出を行なった。

本研究で対象とした FeRh 合金は、低温側が反強磁性、高温側が強磁性である磁気相転移を 360 K で示す。図 1.1 に示すように、反強磁性相では Fe サイトのみが磁気モーメントを持ち G 型のスピン構造を示す一方、強磁性相においては Fe サイトおよび Rh サイトの両方が平行な磁気モーメントを有し[1]、この磁気相転移に伴って 60% 程度の電気抵抗率の変化が生じることが知られている[2]。両相での磁気物性および伝導特性が顕著に異なる上、その転移および共存状態が室温近くで生じる[3, 4]ことから、物質における電荷およびスピンの輸送特性を扱うスピントロニクス分野で注目されている。

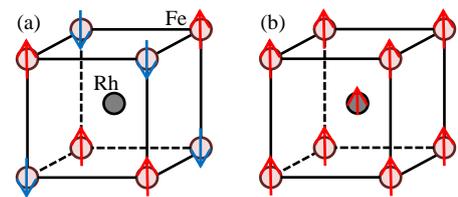


図 1.1. FeRh 合金の(a)反強磁性相および(b)強磁性相でのスピン構造。

この物質をデバイスに組み込むには細線形状への加工が必要であるが、線幅が数百ナノメートルである細線構造をもつ FeRh 合金では、反強磁性－強磁性転移点付近で、バルクや薄膜とは大きく異なる伝導特性が生じることが報告されている[5]。このため、FeRh 合金のスピン輸送特性を調べるには、細線試料での磁気状態を明確にする必要がある。体積が非常に小さい細線試料の磁化を直接測定することは困難であるため、転移に伴う抵抗率の変化を利用して電気測定による転移の検出を行なった。さらに、応用の観点から言えば室温付近で反強磁性－強磁性転移が生じることが好ましい。そこで、本研究では第三元素として Pd を添加することで転移温度を室温程度まで低下させた[6]、FeRh(Pd)合金の薄膜試料および細線試料を作製した。これらの試料について、細線化した FeRh(Pd)合金での反強磁性－強磁性転移における磁気状態を明らかにすることを目的として、電気抵抗測定による相転移の検出を行なった。

この物質をデバイスに組み込むには細線形状への加工が必要であるが、線幅が数百ナノメートルである細線構造をもつ FeRh 合金では、反強磁性－強磁性転移点付近で、バルクや薄膜とは大きく異なる伝導特性が生じることが報告されている[5]。このため、FeRh 合金のスピン輸送特性を調べるには、細線試料での磁気状態を明確にする必要がある。体積が非常に小さい細線試料の磁化を直接測定することは困難であるため、転移に伴う抵抗率の変化を利用して電気測定による転移の検出を行なった。さらに、応用の観点から言えば室温付近で反強磁性－強磁性転移が生じることが好ましい。そこで、本研究では第三元素として Pd を添加することで転移温度を室温程度まで低下させた[6]、FeRh(Pd)合金の薄膜試料および細線試料を作製した。これらの試料について、細線化した FeRh(Pd)合金での反強磁性－強磁性転移における磁気状態を明らかにすることを目的として、電気抵抗測定による相転移の検出を行なった。

2. 実験方法

本研究では FeRh(Pd)合金の薄膜試料および細線試料について電気抵抗測定を行ない、その磁気相転移を検出した。まず、薄膜試料の作製方法および物性評価について述べる。

薄膜試料は DC マグネトロンスパッタ法で作製した。スパッタ源には Fe₄₇(Rh_{94.3}Pd_{5.7})₅₃合金を用い、基板には FeRh 合金との格子マッチングが良い MgO(001)単結晶を用いた。基板温度 600°C で FeRh(Pd)を 60 nm 成長させた後、同一チ

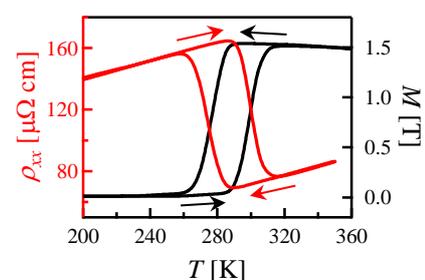


図 2.1. FeRh(Pd)合金薄膜の電気抵抗率および磁化の温度掃引測定。

チャンバー内にて 700°C で 1 時間熱処理し、更に別装置を用いて真空雰囲気下にて 800°C で 2 時間熱処理した。XRD 測定の結果から、FeRh(Pd)(001)合金薄膜は MgO(001)上にエピタキシャル成長していることが確かめられた。図 2.1 に示した磁化の温度掃引測定の結果から、等原子比 FeRh 合金の転移温度より低い 290 K で、20 K 程度の温度ヒステリシスを伴って反強磁性—強磁性転移を示すことが確認された。また、電気抵抗の温度掃引測定を行なった結果を図 2.1 に合わせて示す。磁化測定と同じ範囲で温度ヒステリシスを生じたことから、電気抵抗測定によって反強磁性—強磁性転移が検出できていることがわかる。

図 2.2 に示す電気抵抗測定用の細線試料を以下の工程で FeRh(Pd)合金薄膜試料から加工作製した。ネガ型レジストを用いた電子線リソグラフィ法によって幅が数百ナノメートルである細線パターンを作製し、イオンミリング処理によってレジストに被覆されていない部分の薄膜を除去した。その後残留したレジストを溶解させ除去することで、絶縁体である MgO 基板上に孤立した細線試料を作製した。細線の長手方向は FeRh[110]方向である。電気測定のため、膜厚 100 nm、線幅 100 nm の Cu 電極を FeRh(Pd)合金細線試料上に作製した。

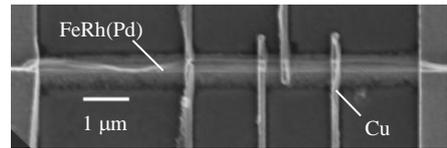


図 2.2. FeRh(Pd)合金細線の SEM 像.

これらの薄膜試料、細線試料について、温度および磁場掃引条件下での電気抵抗測定を行なうことで、反強磁性—強磁性転移の検出を行なった。

3. 実験結果および考察

はじめに、電気抵抗率の温度掃引測定の結果を薄膜試料と線幅 480 nm の細線試料とで比較した。これを図 3.1 に示す。転移温度より高温側あるいは低温側では、薄膜、細線の両試料で金属的な温度依存性を示しており、それぞれ強磁性状態あるいは反強磁性状態にあることが分かる。一方で、転移点近傍での振る舞いには大きな差異が生じた。薄膜試料では転移に伴って抵抗値の連続的な変調が生じていたのに対し、細線試料では降温過程、昇温過程の両方で不連続な抵抗変化が見られた。この原因として、細線試料中での磁区構造が影響していることが考えられる。薄膜試料では多数の磁区が抵抗測定に寄与するため、局所的な磁区構造の変化は反映されにくく、転移に伴って連続的に抵抗が変化する。一方で、細線幅が磁区程度まで微小化された試料では、反強磁性相および強磁性相が共存する転移点近傍において、磁壁あるいは相境界が試料のエッジにトラップされ、幅方向に一樣な磁区が形成される。このような磁区構造が実現していれば、抵抗測定時の電流経路が制限されるため、相境界の移動を伴う磁区のサイズ変化が直接的に抵抗測定に反映され、不連続な抵抗変化が見られるようになると考えられる。

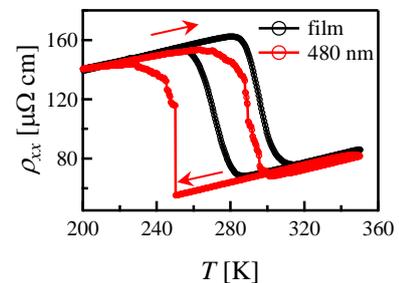


図 3.1. FeRh(Pd)合金薄膜および細線の電気抵抗率の温度掃引測定.

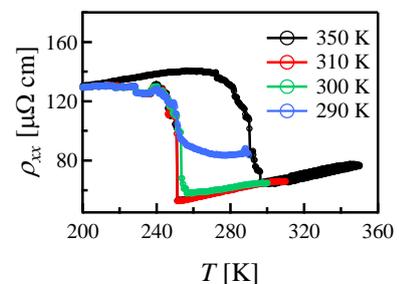


図 3.2. FeRh(Pd)合金細線の温度掃引測定およびそのマイナーループの測定.

細線試料で特徴的だった振る舞いとして、強磁性相から反強磁性相への転移が生じる降温過程で、250 K にて生じた非常に大きな不連続変化がある。この降温過程での転移についてより詳しく調べるため、マイナーループ測定を行なった。図 3.1 に示した温度掃引測定は、反強磁性を示す 160 K を始状態として、350 K まで昇温しつつ抵抗測定を行ない、続けて降温しながら測定している。このマイナーループ測定では、昇温時の最高温度をそれぞれ 310 K、300 K、290 K に変えて同様の測定を行なった。この結果を図 3.2 に示す。310 K、300 K から降温した場合には、メジャーリングと同様に 250 K 付近で不連続な抵抗変化が生じた。一方で、290 K から降温した場合には 250 K までなだらかに転移が生じた。この相違の原因の一つとして、降温を開始する 290 K での磁気状態が完全に強磁性相でないことが影響していると考えている。転移には、欠陥のある点などを起点として生じる新規相の磁区の核形成過程と、形成された核の拡大過程が寄与している[3]。反強磁性相が存在する 290 K から降温した際に見られたなだらかな転移は、反強磁性磁区の拡大によるものと解釈できる。メジャーリングの降温過程において 250 K まで抵抗の上昇が起こっていないのは、反強磁性磁区の核形成過程が抑制されていたことが原因として考えられる。

4. 総括および今後の展開

室温で反強磁性-強磁性転移を示す FeRh(Pd)合金の薄膜試料および細線試料を作製し、その転移を電気測定によって検出・評価した。細線試料では、転移点近傍での磁区構造に由来すると考えられる不連続な抵抗変化が生じた。また、強磁性相から反強磁性相への転移では、薄膜試料に比べ低い温度で非常に急峻な転移が見られた。マイナーループ測定の結果から、細線試料での反強磁性磁区の核形成が強く抑制されることが原因の一つとして考えられる。

今後の展開として、細線試料上での磁区構造を直接観察することで、上に述べた磁区に関する仮説を検証する。また、磁気状態が明らかになった FeRh 合金の細線試料について、未知のスピン伝導物性を測定する。具体的には、FeRh 合金を用いて面内スピンバルブ素子を作製し、その強磁性相がスピン流の注入源として利用できるか、反強磁性相でスピン吸収が生じるかを調べる。

参考文献

- [1] G. Shirane *et al.* *Phys. Rev.* **134**, A1547 (1964).
- [2] J. S. Kouvel and C. C. Hartelius *J. Appl. Phys.* **33**, 1343 (1962).
- [3] C. Baldasseroni *et al.* *Appl. Phys. Lett.* **100**, 262401 (2012).
- [4] C. Baldasseroni *et al.* *J. Phys.: Condens. Matter* **27**, 256001 (2015).
- [5] V. Uhlir *et al.* *Nat. Comm.* **7**, 13113 (2016).
- [6] R. Barua *et al.* *Appl. Phys. Lett.* **103**, 102407 (2013).

学会・研究会等における発表

1. 2016 年 9 月 日本物理学会秋季大会 15aAP-3 「Pd 添加 FeRh 合金薄膜の作製と物性評価」
2. 2016 年 10 月 NSCS-QSD、ポスター発表 「Transition behavior in Pd-doped FeRh wire」