

Co-Al-O 強磁性グラニューラ膜の磁気抵抗

Magnetoresistivity of Co-Al-O ferromagnetic granular films

東北大・金研
石巻専修大・理工
東北大・学際センター
電気磁気研究所
東北大・極低温科学センター*

中村慎太郎*, 岩下貴保, 野島 勉*
吉原 章
大沼繁弘,
藤森啓安

S. Nakamura^{1,5}, T. Iwashita¹, T. Nojima^{1,5}, Y. Yoshihara², S. Ohnuma³, H. Fujimori⁴

¹ Institute for Materials Research, Tohoku University

² Ishinomaki Senshu University

³ Center for Interdisciplinary Research, Tohoku University

⁴ The Research Institute for Electric and Magnetic Materials

⁵ Center for Low Temperature Science, Tohoku University

1. はじめに

TM-Al-O (TM=Co, Fe) グラニューラ膜は絶縁体である Al-O のマトリックスの中に平均直径 20 Å 程度の Co の強磁性金属粒子 (グラニューラ) 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 60 at.% 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 70 at.% 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 TM-Al-O (Fe, Co) 膜では超常磁性膜とは異なり、GMR のような顕著な抵抗変化は観測されない。しかし、いくつかの興味深い現象が観測される。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。[3, 4] 観測されたスピン波の波長は 3000 Å 程度で、グラニューラの平均直径 20 Å 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。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強磁性に近い 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] さらに、筆者らの研究では強磁性膜の磁気抵抗には 8T まで続く線形の負の磁気抵抗があることが分かっている。[5] 本研究では Co-Al-O 強磁性グラニューラ膜の極低温・強磁場中の伝導について研究した。

2. 実験方法

測定には 21 年度に強磁場施設に設置された無冷媒ハイブリッド磁石 (28T) 用の希釈冷凍機を使用した (Fig.1 参照)。ハイブリッド磁石では水冷磁石の水流による振動で発生する磁場の振動による渦電流による発熱をいかに抑えるかが、極低温下の測定を可能にする条件となる。今回設置された希釈冷凍機は Leiden 社製で、渦電流を抑えるため混合器がプラスチックでできている。また、渦電流による発熱があっても大きな温度上昇を起こさないよう 120mK で 400 μW という大きな冷凍能力の仕様となっている。通常、ハイブリッド磁石用に希釈冷凍機を設計すると、磁石が大型であるため希釈冷凍機のテイルが長くなり、もっとも冷える混合器から試料までの距離が長くなる。このため、試料の温度が混合器部分より高くなってしまふ。しかしながら Leiden 社製の希釈冷凍機ではプラスチック製の混合器が最下部にあり、冷却能力を有する混合器内に試料を置くため、この問題を避けることができる。実際の測定では磁石を動かさない状態で最低温は 16mK であった。この状態で水冷磁石に磁場をかけると、温度は 20mK 程度まで上昇した。さらに超電導磁石で磁場を発生させると最低温度は 35mK にあがった。そのまま 27T まで磁場を印加したが、26T 以上の磁場でやや温度が上昇した以外は大きな温度変化は見られなかった。磁場の挿引そのものによる発熱よりも、磁場が水流による機械的振動で揺れていることが発熱の主因になっていると思われる。しかし、35mK 程度の温度で測定可能であることが分かった。

ハイブリッド磁石の運転中はマグネット室への入室ができないため、希釈冷凍機のカムハンドリングシステムは測定室のコンピュータで遠隔操作できるようになっている。Leiden 製の希釈冷凍機は希釈冷凍機本体にも電磁弁がついており、ハイブリッド磁石が発生する磁場によって動作異常が起こるのではないかと心配したが、無

冷媒ハイブリッド磁石では比較的磁石上部の磁場が弱い
ためか、電磁弁の動作異常は起こらなかった。また、
ガスハンドリングシステムはハイブリッドマグネットから
Fig. 1 のように離してあるが、ガスハンドリングシステム
内のターボポンプの動作にも磁場による異常は起こらな
かった。もっとも磁場の影響を受けた部分は温度測定に
用いた AVS のプリアンプで、ガスハンドリングシステムか
らさらに磁石から離れた所に置かないと漏えい磁場によ
って動作異常を起こす。

測定した膜はすべて財団法人電気磁気材料研究所
で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] 基板はガラスまたは
サファイアで膜厚は1-2 μm である。電気抵抗の測定
は4端子法で行い、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。抵抗の測定には ac レジ
スタンスブリッジを用い、温度は RuO_2 温度計で測定
した。試料は希釈冷凍機の混合器内にミクスチャー
に浸かった状態にセットする。



Fig. 1 . Dilution refrigerator for the cryogen-free hybrid magnet.

3. 実験結果と考察

次に極低温、高磁場中の代表的なデータについて述
べる。Fig. 2は $Co_{63}Al_{13}O_{24}$ 強磁性グラニューラ膜の磁気
抵抗である。磁場と電流は薄膜の面に平行である。測
定は 35mK と 4.2K で行っている。35mK のデータが
4.2K のデータに比べてノイズが大きいのは自己発熱を
抑えるため ac レジスタンスブリッジの excitation を低くし
たためである。35mK のデータは磁場の上げ下げでほ
ぼ一致しており、試料の自己発熱による抵抗の温度変
化ではないことが分かる。前述したようにすでに筆者ら
は室温から 35mK までこの膜が高温で 8T まで線形な磁
気抵抗を示すことを確認しているが、線形な磁気抵抗
は 35mK の極低温でも 27T まで観測されることがわか
った。このことは $Co_{63}Al_{13}O_{24}$ 強磁性グラニューラ膜の線形
な磁気抵抗はスピンの温度揺らぎが磁場によって抑制
されることによるものではないことを示している。強磁性
体にもかかわらず磁気抵抗が変化することはグラニュー

ラ構造に起因する磁気異方性が関係している可能性
が考えられるが、今後は低温における磁気測定を行う
必要があるであろう。

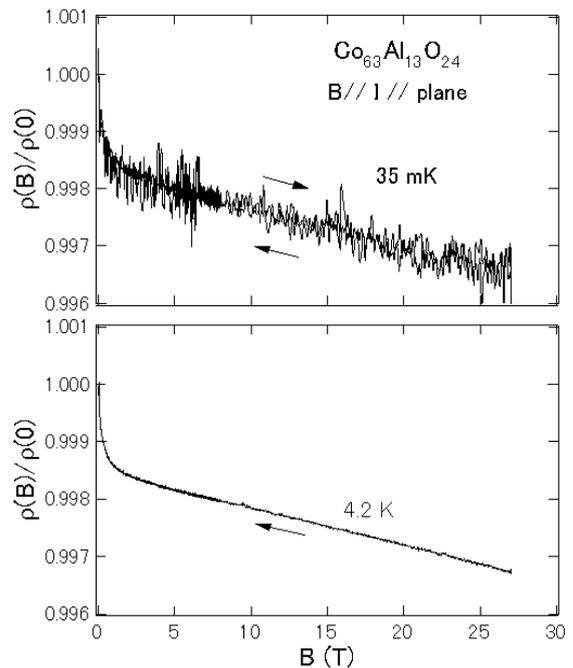


Fig. 2. The magnetoresistivity of $Co_{63}Al_{13}O_{24}$ ferromagnetic granular film at 35mK and 4.2 K. Both the field and current are parallel to the plane of the film.

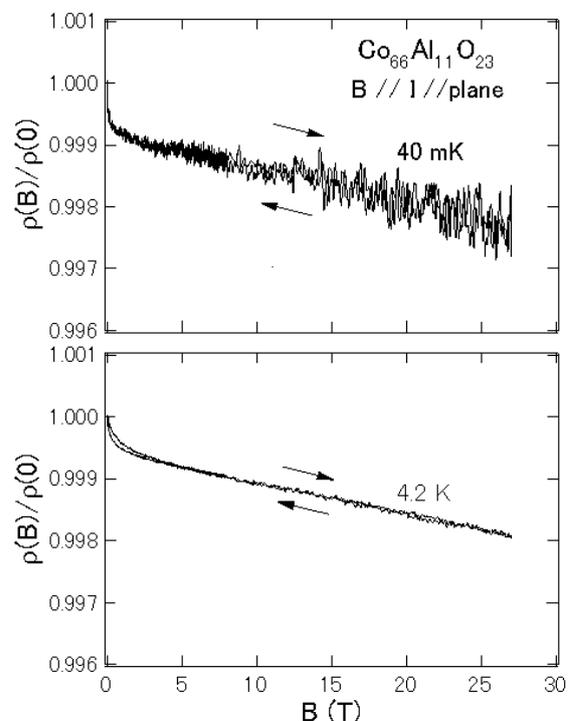


Fig. 3. The magnetoresistivity of $Co_{66}Al_{11}O_{23}$ ferromagnetic granular film at 40mK and 4.2 K. Both the field and current are parallel to the plane of the film.

磁気抵抗の試料依存性を見るために Co 濃度の異なる $\text{Co}_{66}\text{Al}_{11}\text{O}_{23}$ の磁気抵抗も測定した。Fig. 3 にその結果を示す。測定は 40mK と 4.2K で行い、磁場と電流は膜面に平行である。この膜でも極低温で 27T まで線形の負の磁気抵抗が観測された。このことは線形の負の磁気抵抗が強磁性グラニューラ膜の本質的な特徴であることを示唆している。

4. まとめ

極低温、強磁場領域の物性測定のため、無冷媒ハイブリッド磁石中で希釈冷凍機による実験を行うことを試み、35mK、27T での磁気抵抗の測定に成功した。Co-Al-O 強磁性グラニューラ膜の線形な負の磁気抵抗が極低温、強磁場領域まで観測されることを明らかにした。負の線形な磁気抵抗の原因はスピンの熱揺らぎによるものではないことが分かった。

謝辞

無冷媒ハイブリッド磁石用の希釈冷凍機の立ち上げ作業は強磁場超電導材料研究センターの淡路准教授と共同で行いました。淡路准教授にはハイブリッド磁石の特性などについても一から教えていただきました。感謝いたします。

- [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] A. Yoshihara *et al.*: J. Mag. Mag. Mater. **268** (2004) 257.
- [4] A. Yoshihara *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 094704.
- [5] S. Nakamura *et al.*: J. Phys. (Conf. Seri.) in press.
- [6] S. Mitani, H. Fujimori, S. Ohnuma: J. Mag. Mag. Mater. **165** (1997) 141.