博士（工学）学位論文

「Co/Ir 人工格子の作製と磁気的性質」

筑波大学大学院博士課程
工学研究科物理工学専攻

柳原英人

平成10年7月

目次

第1章　序論

1.1　はじめに

固体物理学において，金属人工格子に関わる分野はここ十数年の間に急速に進歩した．その研究対象は，もちろん磁性物理のみではなく，半導体におけるMBE技術や，表面科学，そして材料科学などに起源を持ち，それらが成熟し融合した結果，新物質創製，新機能材料開発への有望な手段として認められてきた．そもそもこのような異種金属を交互に積層した多層膜については相互拡散の実験や，X線或いは中性子線の回折格子として古くから知られていたが，新物質を意図した研究は半導体超格子の成功に刺激されて始まった．現在でも半導体人工格子並の制御が，金属の場合にも実現されたとは言いがたいものの，金属人工格子特有の性質は既にいくつも報告されている [3],[4],[5],[6],[7]．とりわけ1988年にBaibichらの発見したFe/Cr人工格子での巨大磁気抵抗 (GMR) 効果の発見 [1] と，Parkinらによって1990年に報告された磁性金属層と非磁性金属層からなる人工格子の層間磁気結合の振動現象 [2]，そしてCo/Pd人工格子でみられた垂直磁気異方性などは，代表的な磁性金属人工格子に特有の物理現象として今日でも盛んに研究が行われている．また近年では今までの状態図にないような規則合金を作製する試みも行われており，人工新物質の世界は今後も多くの可能性を秘めた魅力的な分野である事は間違いない．

1.2　巨大磁気抵抗効果

強磁性体において，電気抵抗が磁化の方向に依存し，電流方向と磁化が平行の時は垂直の時に比べて若干抵抗が大きいという現象は古くから知られており，異方性磁気抵抗 (AMR) 効果と呼ばれている．ところが人工格子に見いだされた巨大磁気抵抗 (GMR) 効果はAMRに比べて桁違いに大きな抵抗変化を示すため，新しい物理現象として，そしてデバイスへの応用を期待されて盛んに研究されるようになった．図1.1に示すように，Baibichらによっ

て Fe/Cr 人工格子において初めて見いだされた GMR[1] は，その Fe 層が反強磁性配列しているときに抵抗最大となり，磁場を印加して平行配列になったとき抵抗はおおよそ半分まで減少するものであった．また AMR とは異なり，この抵抗変化は磁化と電流方向の関係に依存せず，明らかに異なるメカニズムであることも明らかである．一般的に GMR は磁性層でのスピン依存散乱に起因する現象である．以下にこの GMR のメカニズムについて定性的に述べる．

図 1.2 に最も簡単な GMR のモデルを示す．通常，非磁性層内での伝導電子の平均自由行程 (MFP) は層厚（数Å～数十Å）に比べてはるかに大きく典型的な大きさとしては 100Å 以上である．したがってこの人工格子内の伝導電子の散乱中心は磁性層が支配的になる．伝導電子のマグノンによる散乱のようなスピン反転を伴う過程は支配的ではないとして無視すると，$\uparrow$ と $\downarrow$ のスピンを持つ伝導電子の散乱を独立に考慮するいわゆる two current model での取り扱いができる．すべての磁性層の磁化が平行配列している場合に $\uparrow$ 電子と $\downarrow$ 電子の磁性層による散乱確率が異なるならば，その結果それぞれ $\rho_\uparrow$ と $\rho_\downarrow$ の抵抗率となる．かりに $\rho_\uparrow \gg \rho_\downarrow$ ならば抵抗率の小さい方のスピンを持つ $\downarrow$ 電子が電気抵抗としては支配的となり，全体としての抵抗率は，

$$\rho_{min} = \rho_F = \rho_\uparrow\rho_\downarrow/(\rho_\uparrow + \rho_\downarrow) \tag{1.1}$$

となる事が分かる．一方隣り合う磁性層の磁化が反平行に配列していた場合には，$\uparrow$ と $\downarrow$ のスピンを持つ伝導電子はそれぞれ平均して $(\rho_\uparrow + \rho_\downarrow)/2$ の抵抗率となり，全体としては，

$$\rho_{max} = \rho_{AF} = (\rho_\uparrow + \rho_\downarrow)/4 \tag{1.2}$$

となる．ここでこのスピンに依存した伝導電子の散乱の非対称性を表すパラメータとして

$$\alpha \equiv \rho_\downarrow/\rho_\uparrow \tag{1.3}$$

を定義すると MR 比は，

$$MR = \frac{\rho_{AF} - \rho_F}{\rho_{AF}} = \left(\frac{\rho_\downarrow - \rho_\uparrow}{\rho_\downarrow + \rho_\uparrow}\right)^2 = \left(\frac{\alpha - 1}{\alpha + 1}\right)^2 \tag{1.4}$$

と表せる．なおこの非対称パラメータ α の起源に関しては様々なモデル [8], [9], [10],[11] が提案されていものの，GMR 系における伝導現象を全般に説明できてはいないのが現状である．

人工格子において GMR の出現する条件をまとめると

- $\alpha \gg 1$ または $\alpha \ll 1$ であること．

- 磁性層の磁化が反平行配列していること．

- 伝導電子の平均自由行程が人工格子の周期より長いこと．

- スピン反転の寄与が小さいこと

となる．

1.3 層間結合

非磁性金属層を介した強磁性金属層間の間接的な層間交換結合はIllinois大のグループやベル研のグループで同時期に行われたものが最初である [12],[13]．彼らは希土類磁性金属 (Dy, Er, Gd) と Y のエピタキシャル人工格子を作製し RKKY 相互作用を介して磁気構造に長周期の変調が起こることを示した．また Fe/Cr 人工格子においても Cr 層を介した層間結合の存在 [14],[15] が認識されていたが，実は多くの遷移金属，貴金属系でこの層間結合が見いだされ，しかも長距離に渡ってその符号が振動していることが見いだされた [2]．Parkin らは sputter 法を用いて系統的に非磁性層を変えてその層間結合を調べている [16]．強磁性層を Co として，スペーサ層には遷移金属を変えて作製した多層膜の層間結合周期や振幅を図 1.3 に，そして反強磁性結合を示す多層膜の磁化曲線を図 1.4 に示す．このように様々な系において層間結合が存在することが分かる．実験的にはその後 MBE によるサンドイッチ膜において非磁性原子層で 2 層程度の周期が，10 層程度の周期に重なって振動していることが発見 [17],[18],[19],[20] されたり，磁性層厚やキャップ層厚に依存した層間結合の振動が発見 [21],[22] されている．

GMR 発見がきっかけとなり層間結合に関する研究も盛んにおこなわれるようになったわけであるが，本来物理的にはそれぞれ独立した問題であり，層間結合は金属系における量子サイズ効果が顕在化した現象である．層間結合の振動現象の機構解明を目的とした研究は，理論的，実験的両側面から今日まで数多く存在する．本節ではこの層間結合に関して簡単に説明をする．

非磁性層を介した層間結合を理論的に考察する時，大きく分けて (i) 反強磁性 (AF) 配列状態と強磁性 (F) 配列状態とで全エネルギー計算をおこない比較する．(ii) モデル計算をお

こなう．という2通りの手段がある．前者の方法としてはタイトバインディングモデルを用いる方法や [23]，第一原理にもとづく方法 [25],[26],[27],[28] であり，非常に単純かつ原理的である．しかしながらF状態とAF状態では，全エネルギーに対してそのエネルギー差は非常に僅かである．また非磁性層厚が厚くなるととたんに計算量が増大してしまい長周期の振動現象に対する解析は事実上不可能である．全エネルギー計算による方法で最も問題となることは，その結果から振動周期が何に起因するのか分からないと言うことである．すなわち層間結合の振動は得られてもその物理的描像を与えないのである．一方この様な問題点を回避するために様々なモデルに基づいて計算をおこない，物理的描像を与える方法がいくつも提案されている．(1) 磁性層内でスピンが局在していると仮定し，RKKY相互作用を出発点としたモデル [29],[30],[31],[32] や，(2) 自由電子モデル [33], [34],[35]，(3)sd-mixing モデル [36] などである．なかでもRKKYモデルはAu/FeやAg/Fe人工格子のような貴金属をスペーサとした場合の振動周期を簡潔にかつ見事に説明しており，ここではこのモデルについて説明する．

RKKYモデルは，非磁性母層中に存在する磁性不純物間の相互作用であり，局在したスピンが $s-d$ 相互作用によって周囲の伝導電子を偏極させる事によって生じる．$\mathbf{R}_i$ に局在したスピンを $\mathbf{S}_i$ とすると，$\mathbf{S}_i, \mathbf{S}_j$ 間に働く相互作用は，

$$\mathcal{H}_{ij} = J(\mathbf{R}_{ij})\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \tag{1.5}$$

とあらわされる．ただし，

$$J(\mathbf{R}) = \frac{4A^2 m {k_F}^4}{(2\pi)^3\hbar^2} F(2k_F R), \tag{1.6}$$

$$F(x) = \frac{x\cos x - \sin x}{x^4} \approx \frac{\cos x}{x^3} \quad \text{for } x \to \infty \tag{1.7}$$

であり，Rが十分大きな場合にはその距離の -3 乗に比例して相互作用は減少する．いま強磁性層 $(F1, F2)$ が非磁性層によって z の間隔で隔てられているとするならば，磁性層間結合は，

$$I_{1,2} = \frac{d}{V_0} S^2 \sum_{j\in F2} J(\mathbf{R}_{0j}) \tag{1.8}$$

となる．$F2$ での和を積分に置き換えて実行すると，式1.8は，

$$I_{1,2} \approx -I_0 \frac{d^2}{z^2} \sin(2k_F z) \quad \text{for } z \to \infty. \tag{1.9}$$

となり，振動周期は $\Lambda = \lambda_F/2$ であり，磁性層間の距離 z の -2 乗に比例して層間結合の強さは減少する．以上は自由電子近似をおこなった場合の議論であるが，これでは振動周期は格子定数程度の大きさとなってしまい，10Å 前後の振動周期を説明できない．実際には伝導電子はバンド構造を持っており，この点を考慮する必要が生じる．現実のバンド構造を考えると RKKY 相互作用の Λ は Kohn 異常をもたらす波数ベクトル $\mathbf{q}_s$ をもちいて $2\pi/q_s$ で表される．とくにフェルミ面が遷移金属に比べて単純な貴金属などでは Bruno らが示したように [31]，簡単に成長方向に対する振動周期の違いを説明できる．

また近年では Stiles[37] や Bruno[38] により人工格子を量子井戸として取り扱い，そのスピン依存した伝導電子の多重干渉効果が層間結合を生じる原因であると説明したモデルもあり，このモデルは，キャップ層や磁性層厚依存する振動現象を説明できる．最近では Fe/Au/Fe サンドイッチ膜を用いて，SEMPA と MOKE 顕微鏡により振動周期と層間結合の大きさを決定し，理論から予想される値と良い一致が見られている [39].

1.4 本研究の目的

本研究では人工格子に見られる特徴的な物性の中で，層間結合に注目した．前節で述べたように人工格子における磁性層間振動現象は非磁性層の役割が非常に重要である．人工格子の非磁性層における磁気分極を直接観測した例は，X 線円磁気二色性 [40] や，NMR による研究 [41] が挙げられる．しかしながらこれらの研究では測定結果の解釈の困難さから，強磁性結合状態或いは非結合状態での試料しか実験対象にならないため，反強磁性結合状態での実験は大変難しい．

また強磁性層に非磁性層を組み合わせたような二層膜において，非磁性層内での磁気分極の研究も盛んにおこなわれている．これは SPSEE(Spin Polarized Secondary Electron Emission)[42] や UPS，XPS を [43] などを用いて非磁性層表面から放出される電子の磁気分極が非磁性層厚によって振動することを観測しているのである．このような方法では非磁性層内の磁気分極をはっきりと観測できるものの人工格子に対しては同様の測定をおこなうことは不可能である．

本研究では反強磁性結合した人工格子の非磁性層内における磁気分極を観測する手法として，X 線共鳴磁気散乱法 (XRES) を用いることを考えた．この方法の特徴としては，

- 元素の吸収端近傍の共鳴エネルギーを用いて測定をおこなうことにより磁気散乱因子が数桁大きくなるため，非磁性原子の僅かな磁気分極を観測できる．
- 共鳴エネルギーは元素ごとに異なるためある元素に注目した磁気的情報が得られる．
- X 線回折を用いれば高分解能の測定が可能にである．

といったことが挙げられる．この方法を使うことにより，層間結合のある人工格子で RKKY 分極した非磁性層内の磁気秩序が観測される可能性は十分考えられる．XRES を用いた測定では，L 端付近のエネルギーを用いることが有望である．したがって XRES により回折実験をおこなう場合，その共鳴エネルギーから $5d$ 遷移金属（L 端で 11kev~14keV : $\lambda = 1 \sim 2$Å）が適当であることがわかる．ほとんどの遷移金属で層間結合の振動は観測されているが，強い結合を示す非磁性層ほど層内の磁気分極は大きいと予想される．図 1.3 に示した層間結合の周期律表からあきらかなように，$5d$ 遷移金属では Ir が最強の結合を示すことから非磁性層として Ir を選択した．

本研究は，XRES 法を用いた非磁性 Ir 層内の磁気分極を観測することを目的として始まった．sputter 法によって作製した Co/Ir 人工格子を提供してもらい，96 年につくば市の KEK PF 施設にて XRES 実験をおこなったが，人工格子としての構造は良好ではなく，XRES 測定には不向きな試料であった．この目的のためには良好な構造を持ち，反強磁性に層間結合した Co/Ir 人工格子が不可欠であることが分かった．

本研究では，XRES 測定を目的とした高品位 Co/Ir 人工格子の MBE による作製を主目的とし，作成方法，人工格子構造の評価，そして磁性層間結合の評価を行った．

1.5 本論文の構成

本論文の構成は以下の通りである．第 2 章では，スパッタリング法で作製された Co/Ir(110) 人工格子の磁性について述べる．第 3 章では，MBE 法を用いた Co/Ir(001) 人工格子の作成方法，そしてその構造評価と，磁性について述べる．第 4.1 章では，XRES 法により Co/Ir 人工格子の非磁性 Ir 層内の磁気分極と思われる信号を観測した事を述べる．この測定は現在のところ予備的な結果しか得られていない．

参考文献

[1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).

[2] S. S. P. Parkin, N. More, K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. **64**, 2304 (1990).

[3] *Metallic Multilayer and Epitaxy*, ed. M. Hong, S. Wolf, and D. C. Gubser, The Metallurgical Soc., (1988).

[4] Metallic Superlattices, ed. T. Shinjo, and T. Takada, Elsevier, (1987).

[5] *Magnetism and Structure in Systems of Reduced Dimension*, ed. Robin F. C. Farrow, Bernard Dieny, Markus Donath, Albert Fert, and B. D. Hermsmeier, Plenum, (1993).

[6] *Ultrathin Mgnetic Structures* Vol.1 and 2, ed. J. A. C. Bland, and B. Heinrich, Springer-Verlag (1994).

[7] 金属人工格子，藤森，新庄，山本，前川，松井編，アグネ技術センター (1995).

[8] P. M. Levy, S. Zhang, and A. Fert, Phys. Rev. Lett. **65**, 1643 (1990); S. Zhang, P. M. Levy, and A. Fert, Phys. Rev. **B 45**, 8689 (1992); S. Zhang, and P. M. Levy, J. Appl. Phys. **73**, 5315 (1993).

[9] J. Inoue, and S. Maekawa, Prog. Theor. Phys. Suppl. **106**, 187 (1991); J. Inoue, H. Itoh, and S. Maekawa, J. Phys. Soc. Jpn., **61**, 1149 (1992).

[10] D. M. Edwards, and J. Mathon, J. Magn. Magn. Mater. **93**, 85 (1991); J. Mathon, Contemp. Phys. **32**, 143 (1991).

[11] L. Xing, Y. C. Chang, M. B. Salamon, D. M. Frenkel, J. Shi, and J. P. Lu, Phys. Rev. **B 48**, 6728 (1993).

[12] R. W. Erwin, J. Borchers, M. B. Salamon, S. Shinha, J. J. Rhyne, J. E. Cunningham, and C. P. Flynn, Phys. Rev. Lett. **56**, 259 (1986).

[13] C. F. Majkrzak, J. W. Cable, J. Kwo, M. Hong, D. B. McWhan, Y. Yafet, J.W. Waszczak, and C. Vettier, Phys. Rev. Lett. **56**, 2700 (1986).

[14] J. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, and H.Sowers, Phys. Rev. Lett. **57**, 2442 (1986).

[15] C. Carbone, and S. F. Alvarado, Phys. Rev. **B 36**, 2433 (1987).

[16] S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. **67**, 3598 (1991).

[17] J. Ungris, R. J. Celotta, and D. T. Pierce, Phys. Rev. Lett. **67**, 140 (1991).

[18] S. T. Purcell, W. Folkers, M. T. Johnson, N. E. W. McGee, K. Jager, J. aan de Stegge, W. B. Zeper, W. Hoving, and P. Grünberg, Phys. Rev. Lett. **67**, 903 (1991).

[19] M. T. Jhonson, S. T. Purcell, N. E. W. McGee, K. Jager, J. aan de Stegge, W. B. Zeper, and W. Hoving, Phys. Rev. Lett. **68**, 2688 (1992).

[20] A. Fuß, S. Demokritov, P. Grünberg, nad W. Zinn, J. Magn. Magn. Mater. **103**, L221 (1992).

[21] S. N. Okuno, and K. Inomata, Phys. Rev. **B 51**, 6139 (1995).

[22] S. N. Okuno, and K. Inomata, J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 3631 (1995).

[23] D. Stoeffer and F. Gautier, Prog. Theor. Phys., Suppl. **101**, 139 (1990); Phys. Rev. **B 44**, 10389 (1991).

[24] F. Herman, J. Sticht, and M. van Schilfgaarde, J. Appl. Phys. **69**, 4783 (1991).

[25] S. Krompiewski, U. Krey, and J. Pirnay, J. Magn. Magn, **121**, 238 (1993).

[26] S. Krompiewski, U. Krey, and J. Pirnay, J. Magn. Magn. Mater, **121**, 238 (1993).

[27] S. Krompiewski, F. Süss, and U. Krey, Europhys. Lett. **26**, 303 (1994).

[28] P. Lang, L. Nordstörm, R. Zeller, and P. H. Dederichs, Phys. Rev. Lett. **71**, 1927 (1993); L. Nordstörm, P. Lang, P. H. Dederichs, and R. Zeller, Phys. Rev. **B 50**, 13058 (1994).

[29] Y. Yafet, Phys. Rev. **B 36**, 3948 (1987).

[30] C. Chappert and J. P. Renard, Europhys. Lett. **15**, 553 (1991).

[31] P. Bruno and C. Chappert, Phys. Rev. Lett. **67**, 1602 (1991); **67**, 2592(E) (1991); Phys. Rev. **B 46**, 261 (1992).

[32] R. Coehoorn, Phys. Rev. **B 44**, 9331 (1991).

[33] J. Barnaś, J. Magn. Magn. Mater. **111**, L215 (1992).

[34] R. P. Erickson, K. B. Hathaway, and J. R. Cullen, Phys. Rev. **B 47**, 2626 (1993).

[35] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. **126**, 374 (1993).

[36] Y. Wang, P. M. Levy, and J. L. Fry, Phys. Rev. Lett. **65**, 2732 (1990).

[37] M. D. Stiles, Phys. Rev. **B 48**, 7238 (1993); J. Appl. Phys. **79**,5805 (1996).

[38] P. Bruno, J. Magn. Magn. Mater. **121**, 248 (1993); Phys. Rev. **B 49**, 13231 (1994); Phys. Rev. **B 52**, 411 (1995).

[39] J. Unguris, R. J. Celotta, and D. T. Pierce, Phys. Rev. Lett. **79**, 2734 (1997).

[40] M. G. Samant, J. Stöhr, S. S. P. Parkin, G. A. Held, B. D. Hermsmeier, F. Herman, M. van Schilfgaarde, L. -C. Dura, D. C. Mancini, N. Wassdahl, and R. Nakajima, Phys. Rev. Lett. **72**, 1112 (1994).

[41] A. Goto, Y. Yasuoka, H. Yamamoto, and T. Shinjo, J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 2129 (1993).

[42] T. Furukawa and K. Koike, Phys. Rev. **B 54**, 17896 (1996); Phys. Rev. **B 57**, 2694 (1998).

[43] K. Garrison, Y. Chang, and P. D. Johnson. Phys. Rev. Lett. **71**, 2801 (1993); R. K. Kawakami, E. Rotenberg, E. J. Escorcia-Aparicio, H. J. Choi, T. R. Cummins, J. G. Tobin, N. V. Smith, and Z. Q. Qiu, Phys. Rev. Lett. **80**, 1754 (1998).

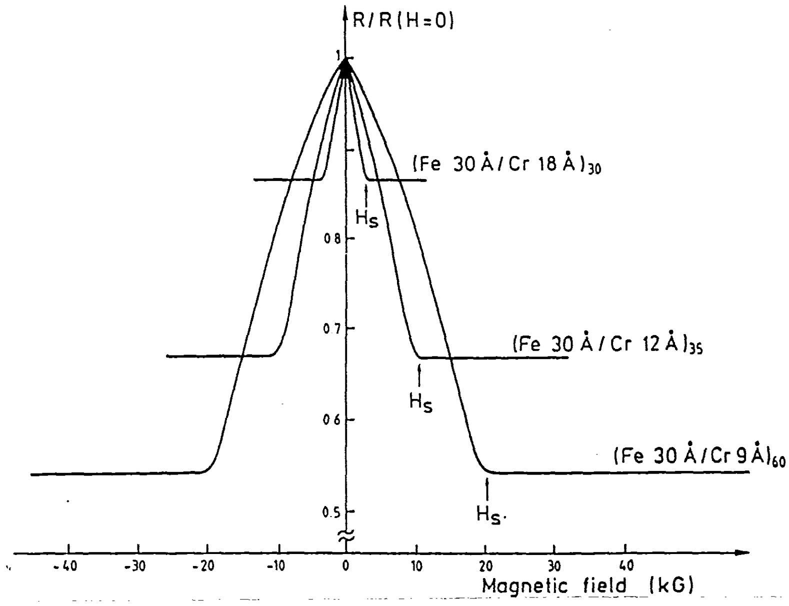


図 1.1: Fe/Cr 人工格子の電気抵抗の磁場依存性（文献 [1] より引用）.

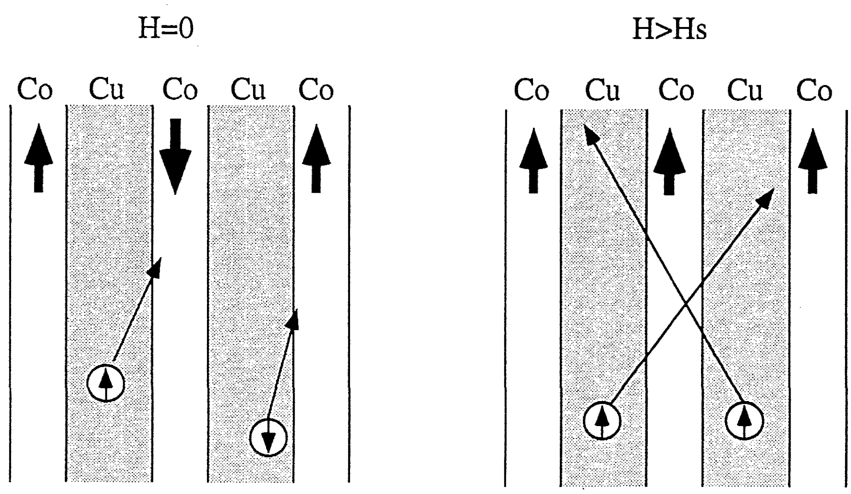


図 1.2: GMR 効果での伝導電子の散乱モデル.

Ti	**V**	**Cr**	**Mn**	**Fe**	**Co**	**Ni**	**Cu**
No Coupling	9 | 3	7 | 7		Ferro-Magnet	Ferro-Magnet	Ferro-Magnet	8 | 3
	0.1 | 9	.24 | 18					0.3 | 10
2.89	2.62	2.50	2.24	2.48	2.50	2.49	2.56
Zr	**Nb**	**Mo**	**Tc**	**Ru**	**Rh**	**Pd**	**Ag**
No Coupling	9.5 | 2.5	5.2 | 3		3 | 3	7.9 | 3	No Coupling	No Coupling
	.02 | *	.12 | 11		5 | 11	1.6 | 9		
3.17	2.86	2.72	2.71	2.65	2.69	2.75	2.89
Hf	**Ta**	**W**	**Re**	**Os**	**Ir**	**Pt**	**Au**
No Coupling	7 | 2	5.5 | 3	4.2 | 3.5		4 | 3	No Coupling	No Coupling
	.01 | *	.03 | *	.41 | 10		1.85 | 9		
3.13	2.86	2.74	2.74	2.68	2.71	2.77	2.88

fcc　bcc
hcp　complex cubic

Element	
A_1 (Å)	ΔA_1 (Å)
J_1 (erg/cm²)	P (Å)
r_{ws} (Å)	

図 1.3: Co と遷移金属の多層膜における層間結合の周期律表（文献 [20] より引用）. P (Å) :層間振動の周期, J_1(erg/cm^2) :第 1AF での結合定数, $\mathbf{A_1}$ (Å) :第 1AF のスペーサ層厚, $\Delta\mathbf{A_1}$ (Å) :第 1AF の幅.

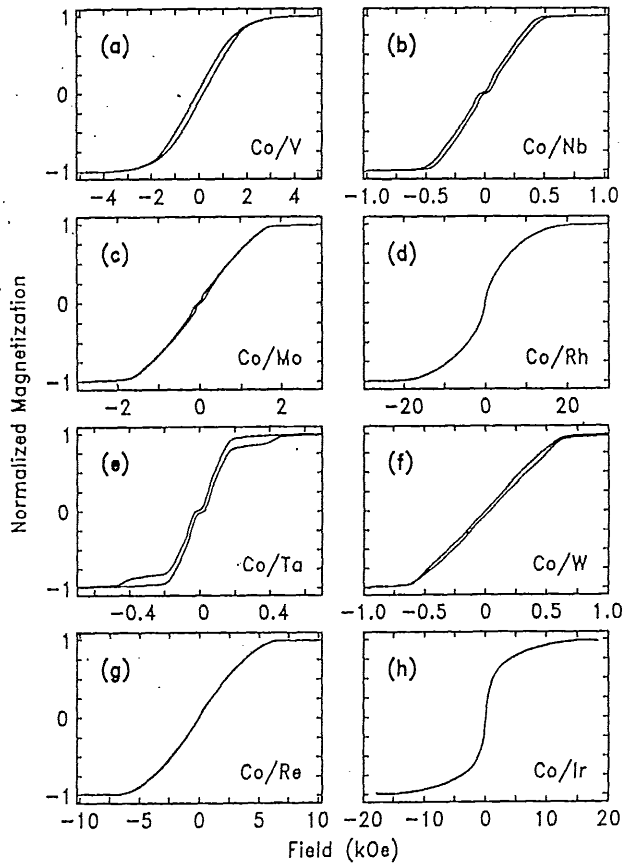


図 1.4: 反強磁性結合している Co と遷移金属の多層膜における MH 曲線（文献 [20] より引用）.

第2章　スパッタリング法で作製された Co/Ir(110) 人工格子の磁性

2.1　はじめに

本章では，XRES実験用に作製されたCo/Ir(110)人工格子の磁気特性について述べる．この研究で用いた試料は，磁気的には良好な特性を示したが，X線回折で観測される構造としては良好なものではなかったため，XRESの測定には不向きであったが，結合型の磁性多層膜としては非常に興味深い磁化過程を示したことから，磁気抵抗，磁化過程を中心に測定，解析を行った．

磁性多層膜において見いだされた代表的な磁性として，垂直磁気異方性，磁性層間結合，巨大磁気抵抗効果が挙げられる．コバルトとイリジウムとの多層膜においても，他の貴金属との組み合わせと同様に，Co層が非常に薄い場合には磁場を膜面に垂直に印加した方が，膜面内に印加するよりも磁化しやすいという垂直磁気異方性の報告がある[1]．一方層間結合の観点からも，Co/Irの多層膜ではその反強磁性結合の大きさが非常に強いことが知られており[2]，興味深い系である．またCoは，基板やバッファー層，あるいは温度等の成膜条件に強く依存してその結晶構造が変わることが知られており，結晶構造とその配向そして層間結合との共存した系で，特異な磁化過程に反映されることが期待される．この章の主要な部分はJournal of Applied Physisics誌に発表済みのものである[3]．実際には多結晶構造のCo/Ir多層膜はいくつか報告があるが，単結晶様の構造を持つCo/Irの人工格子に関する報告はこれまでになく本研究が最初のものとなる．この章ではCo/Ir人工格子を，2回の対称性を持つMgO(110)上にスパッタリング法を用いて作製した試料の膜構造および磁気特性について述べる．そしてその磁化過程をコヒーレントローテーションモデルを用いたシミュレーションを用いて解析した．

2.2 実験方法

試料は米IBM社Almaden Research CenterにおいてS.S.P.Parkin博士によって作製されたものである．成膜方法はマグネトロンスパッタリング法である．基板には $2mm \times 15mm$ の短冊状の単結晶MgO(110)を用いている．基板の長手方向は，MgO[001]方向に一致しており，短手方向はMgO[$1\bar{1}0$]方向である．はじめに基板温度を500°Cとし，バッファ層としてFe 5Å/Pt50Åを成長させる．その後，基板温度を100°Cに下げ，Irを50 Å積層した後Co12 Å/Ir16 Åを100周期成長させた．酸化防止のためのキャップ層として最終層であるIr層は50Å積層している．成長速度はCo，Ir，Fe，Pt共に2.0Å/secとなるよう制御されている．Ir層厚により層間結合の振動周期と位相，そして強さが決定するのであるが，この試料はちょうど2番目のAF結合ピークとなるよう選んである[4].

構造評価には粉末用2軸X線回折計(XRD)を用いた．線源としてCoとCuの K_α を使用し，中角領域の測定を行った．磁気測定に関してはQuantum Design社製SQUID磁力計（MPMS R2)を用いて磁化の磁場依存性(*MH*)を測定した．測定磁場は±50kOeまでである．電気抵抗の磁場依存性，いわゆる磁気抵抗(MR)効果については通常の4端子法を用いて測定した．このときの磁場は±15kOeの範囲で測定を行い，電流はMgO[001]方向に流した．MR及びMH測定時の印加磁場の向きは基本的にMgO[001]方向とMgO[[$1\bar{1}0$]であった．図2.1に試料の形状と電流の関係を示す．また測定温度は室温(300K)と10Kで行った．基板の対称性に起因する磁気的異方性を評価する事を目的とし，室温において14kOeまで磁場を印加し磁気トルクの測定を行った．

2.3 実験結果および考察

図2.2にXRDの結果を示す．散乱強度は対数でスケールしてある．線源にはCoの K_α (λ =1.79Å)を用いて得られた結果を示してある．試料はCoが含まれているため，線源にCuを用いた場合その K_α 線は，CoのK吸収端よりわずかに高いエネルギーとなるためバックグランドが高くなり，S/Nが著しく減少することが予想されたが，実際には光学系の違い程度の差しか見受けられなかった．

$2\theta = 73.84°$ には基板MgO(220)からの強い反射があるため，この近傍の測定は行っていない．$2\theta \approx 81°$ を中心として人工格子の周期長を反映した超格子反射が $2\theta \geq 80°$ の範囲で

3 点ほどみられる．一方これより低角側の超格子反射は基板 MgO(220) の反射に隠れてしまい，観測されなかった．このように Ir(220) 反射を中心に超格子反射がみられることから，人工格子の Ir 層は基板と同様に fcc 構造を取り膜面垂直方向に (220) 配向しているものと考えられる．XRD パターン全体を通して超格子反射のピーク幅は広くまた反射として観測されるピークのの数も少ないことから，コヒーレンスはあまり高くなく，Co 層-Ir 層界面での拡散の大きな人工格子であることがいえる．低角側 $2\theta \approx 50°$ にはバッファ層の Pt の寄与と超格子反射が観測された．この場合 hcp-Co(100) 反射の近傍に超格子からの寄与がみられ，スパッタ法で作製した試料に良くみられるような fcc-Co(111) を示唆する角度にはピークは観測されなかった．このことは Co 層が hcp 構造を取りその c 軸は面内に寝ていることを示唆している．XRD プロファイル全体を通して fcc-Ir(220) 近傍と hcp-Co(100) 近傍以外にはピークがみられなかったことから，fcc-Ir(110)//hcp-Co(100)//fcc-MgO(110) 配向して成長しているものと考えられる．

図 2.3 に室温 (RT) および，10K における磁化曲線を示す． 磁化 (M) は基板の寄与を考慮し，測定した試料の膜面積と設計値の膜厚から決定した．なお磁化はすべて Co 原子によるものと仮定して算出した．印加磁場を H//MgO[1$\bar{1}$0] としたときに得られた磁化曲線は室温ではほとんどヒステリシスを示さず，H_S=19kOe で飽和した．また 10K のときは多少ヒステリシスがみられ，飽和磁場は H_S=22kOe であった．一方 H//MgO[001] の方向に磁場を印加したときに得られた磁化曲線は階段状となり，H_S =800Oe (RT),H_S =3kOe (10K) であった．またこちらの方向に磁場を印加して得られた磁化曲線では残留磁化が僅かにみられた．

H =14kOe でのトルク測定の結果を図 2.4 に示す．MH 曲線から困難軸方向に磁場を印加した場合の飽和磁場は H_S=19kOe であったが，印加磁場が $H_S \geq$ 13kOe ではトルク曲線はほぼ同じ形状であったため磁化は十分飽和しているとみなした．トルク曲線の結果は典型的な一軸異方性のトルク曲線であり，その容易軸は MgO[001] 方向であり，困難軸は MgO[1$\bar{1}$0] 方向と平行であることがわかる．その一軸異方性の大きさは $K_u \approx 5 \times 10^6$ erg/cc であった．実験精度を考慮すると，この値はバルク hcp-Co の c 軸方向の値 ($K_u = 4.6 \times 10^6$ erg/cc)[5] と非常に近い値であり，XRD の結果も併せて考えると，Co 層は hcp 構造を取り，その c 軸は基板 MgO[001] と平行になっているものと考えられる．

飽和磁化 (M) の値は，室温では 940 emu/cc であり，低温 10K では 1110emu/cc であっ

た．bulk の hcp-Co では飽和磁化は M=1440 emu/cc[5] であり，測定精度を考慮しても明らかに磁化の減少が生じていることが分かる．これは Co-Ir の界面での拡散に伴う Co 層磁化の減少や，あるいは Ir の磁気分極に伴う結果であると考えられるが，詳細に関しては不明である．

次に MR の結果を図 2.5 に示す．MR 比 $(= \Delta R/R(H_S))$ は室温 0.3%，T=10K では 1.2%であった．困難軸方向に磁場を印加して（H//MgO[1$\bar{1}$0]）得られた MR 曲線はヒステリシスはほとんどなかった．H=15kOe の磁場で，常温では概ね飽和しているように見えるものの，T=10K では飽和するのには十分といえる磁場ではなかった．一方容易軸方向に磁場を印加した場合（ H//MgO[001]）には台形のヒステリシスを持つ MR 曲線となり，その幅は数 kOe であった．測定時電流は MgO[001] に平行であり，磁場の方向のみが $H//I, H \perp I$ の 2 方向で測定したのであるが，どちらの場合でも負の磁気抵抗を示したことから，異方性磁気抵抗 (AMR) 効果は GMR 効果に比べて小さいものと考えられる．このような MR の変化は MH 過程を反映しているものと考えられる．

階段状の磁化過程や台形の変化を示す MR は，非磁性層を保磁力差のある強磁性体で挟んだような非結合型の多層膜ではよくみられる [6]．しかしながらこの試料では強磁性層はすべて同じ厚さの Co 層であり，しかもその強磁性層同士は AF 的に間接結合している．このような特異な形状の MR 或いは MH 曲線の原因を理解するべく，その磁化過程をシミュレーションを用いて解析した．モデルとして，Fujiwara ら [7] の提案したものを用いた．彼らは，磁性多層膜にいくつか相互作用を取り込んだ Stoner-Wohlfarth モデルを用いて，磁化過程と GMR の磁場依存性が結合パラメータ印加磁場の大きさ方向，履歴によってどのように変化するのか解析的に取り扱った．まずこの Fujiwara らによって導入されたモデルを説明する．試料は，$2N$ 枚の均一かつ等厚 (t) の強磁性層からなり，どの層にも同様に面内に 1 軸異方性 (K_u) があると仮定する．図 2.6 に奇数番目と偶数番目の磁性層の磁化 $M1, M2$，そして外部磁場 H の位置関係を示す．それぞれの角度は容易軸方向からとって，θ_1, θ_2, ψ と定義している．

単位体積あたりの全エネルギーは，

$$\begin{aligned} E(\theta_1, \theta_2) &= \frac{K_u}{2}(\sin^2\theta_1 + \sin^2\theta_2) + \frac{2N-1}{2Nt}[J_1\cos(\theta_1-\theta_2) + J_2\cos^2(\theta_1-\theta_2)] \\ &- \frac{MH}{2}[\cos(\psi-\theta_1) + \cos(\psi-\theta_2)] \end{aligned} \tag{2.1}$$

ここで J_1, J_2 はそれぞれ1次および2次 (biquadratic) の結合定数である．$J_1 > 0$ であれば，隣り合う強磁性層は反平行にそろう．$J_2 > 0$ の時，biquadratic な層間結合は隣り合う強磁性層が 90° に並ぶと一番エネルギーが小さくなる様な相互作用であり，Fe/Cr 多層膜において最初に見つけられた効果である [8]. この biquadratic 結合の原因は未だに明快な解釈は与えられていないが，Slonczewski は強磁性層と非磁性層の界面に生じた原子層程度のテラス状の構造揺らぎを仮定しこの効果を説明している [9]．また界面付近での強磁性層との結合の弱い部分に存在する loose-spin による説明も試みられている [10]．取り扱いを簡単にするため，式 2.1 を書き換えると，

$$\epsilon = \frac{H_k}{2}(\sin^2\theta_1+\sin^2\theta_2)+\frac{H_1}{2}\cos(\theta_2-\theta_1)+\frac{H_2}{2}\cos^2(\theta_2-\theta_1)-H[\cos(\psi-\theta_1)+\cos(\psi-\theta_2)] \tag{2.2}$$

のようになる．ここで $\epsilon \equiv 2E/M$ とした．またそれぞれ磁場の次元を持つ係数は，

$$H_k \equiv \frac{2K_u}{2}, \quad H_1 \equiv \frac{2(2N-1)}{Nt}\frac{J_1}{M}, \quad H_2 \equiv \frac{2(2N-1)}{Nt}\frac{J_2}{M}. \tag{2.3}$$

である．さらに $M1, M2, H$ の容易軸からの角度を

$$\xi = \theta_2 - \theta_1, \quad \eta = \frac{\theta_1+\theta_2}{2} \tag{2.4}$$

と書き換えると，

$$\begin{aligned} \epsilon(\xi,\eta) = \quad & H_k[\sin^2(\frac{\xi}{2})\cos^2\eta + \cos^2(\frac{\xi}{2})\sin^2\eta] \\ + \quad & \frac{H_1}{2}\cos\xi + \frac{H_2}{2}\cos^2\xi - 2H\cos(\frac{\xi}{2})\cos(\psi-\eta) \end{aligned} \tag{2.5}$$

となる．

この章で取り扱っている試料では $N = 50$ であり十分に大きいとして，2.3 は

$$H_1 \equiv \frac{4J_1}{tM}, \quad H_2 \equiv \frac{4J_2}{tM}. \tag{2.6}$$

となる．ここで系全体の磁化，および GMR の寄与による抵抗変化は

$$M_{tot} \propto \cos(\xi/2)\cos(\psi-\eta)\Delta R \propto \cos(\xi) \tag{2.7}$$

となる．磁壁移動を無視し，磁化変化はすべてコヒーレント回転のみであると仮定し，このモデルを用いて磁化過程をシミュレーションを行う．任意の外部磁場やその履歴まで含むよ

うな一般的な磁化配列は，解析的な手法のみでは決められないため，ある磁化配列を初期値として与え，そこから自由エネルギーの平衡状態を最急降下法を用いて決定し，求められた磁化配列を再び初期値として採用する,「繰り返し法」を用いた [11]．すべての磁化が磁場方向に揃っているような飽和状態を初期値としてそこから印加磁場を減らしながらそれぞれの磁場での磁化配列を決定することにより磁化過程を計算した．容易軸方向 ($\psi = 0$)，困難軸方向 ($\psi = 90°$) それぞれの飽和磁場 $H_{s,e}, H_{s,h}$，残留磁化 $M_{r,e}, M_{r,h}$ などの値は解析的に求められる．

$$H_{s,e} = H_1 + 2H_2 - H_k \quad H_{s,h} = H_1 + 2H_2 + H_k \tag{2.8}$$

容易軸方向の磁化曲線で有限の残留磁化が生じるための条件は，$2H_2 \geq H_k - H_1 > 0$ であり，このときの磁化配列は，$\xi = \cos^{-1}[(H_k - H_1)/2H_2]$ となる．同様に困難軸方向では，

$$2H_2 \leq H_k + H_1 \tag{2.9}$$

となる．

容易軸方向で MR にステップが生じる,「スイッチ」磁場 (H_{sw}) は $\xi = \pi, \eta = \pi/2$ が平衡点でないという条件から，

$$H_{sw} = \sqrt{H_k(H_k + H_1 - 2H_2)} \quad forH_k + H_1 > 2H_2. \tag{2.10}$$

困難軸で得られた MH 曲線をみると残留磁化がほとんどなく，しかも磁場に対する各層の磁化の対称性を考慮すると η は常に $\pi/2$ であることから，$\xi(H = 0) \approx \pi$ であると考えられる．また容易軸方向の MR の plateau での値が，困難軸方向での $H = 0$ の値とほとんど同じ値であることから，容易軸方向に磁場を印加して得られた MR の plateau の部分では $\xi \approx \pi$ である事が分かる．$H_{s,h}$ と plateau の幅，すなわち「スイッチ」磁場 (H_{sw}) との比は 10K では約 5 程度であり，この条件（$H_{s,h}/H_{sw} \approx 5$）と式 2.9 と式 2.10 とを考慮して適当なパラメータを選びシミュレーションを行った結果が，図 2.7，図 2.8 である．

図 2.7 では biquadratic 項を含まない場合の計算を行い，図 2.8 では biquadratic 項を含むシミュレーションを行った．どちらの場合も上述の条件 $H_{s,h}/H_{sw} \approx 5$ を満たし，$H_{s,h} = 3.4(a.u.)$ となるような適当なパラメータを選び実験結果に一番近い曲線を取るように最適化した．図 2.7，図 2.8 を較べるまでもなく，biquadratic 項を含んだ結果の方が実験結果に近い曲線を再現している．

このbiquadratic項を含んだ結果について考えると，困難軸方向の磁化過程ではヒステリシスはなく，$\eta = \pi/2$ の関係を保って変化している事が分かる．一方容易軸方向の磁化過程では幅広のplatauがみられ，それに対応した階段状の磁化曲線が再現されている．ゼロ磁場近傍のMR，MH 曲線は実験結果と符合しない部分もあるが，biquadratic項をモデルに導入することによっておおよそ特徴的な磁化過程は再現できたといえる．実験結果との不一致の理由としては磁化の変化を一斉回転のみとしたことが考えられ，同一層内でのfanningあるいは磁壁移動およびピン留めの効果といった過程も考慮することにより，より改善されるものと考えられる．

2.4 まとめ

以上の結果スパッタリング法により作製されたCo(12Å)/Ir(16Å)(110)人工格子は面内に強い磁気的異方性を有し，その大きさはバルクhcp-Coの値に近いことが分かった．XRDパターンからその構造は比較的乱れが大きくXRES測定には適していない試料であったものの興味深い磁化過程を示した．XRD及び磁気トルクの測定から人工格子の成長方位は(100)[001] Co// (110)[001] Ir //(110)[001] MgOであると考えられる．拡張したStoner-Wohlfarthモデルを用いて，磁化変化を一斉回転であると仮定したシミュレーションを行った結果，強いbiquadratic項を含む様な結合が存在する場合についてのみ MH やMR曲線を再現できることから，強磁性層間に90° 結合が存在していることが示唆された．

参考文献

[1] F.J. A. den Broeder, W. Hoving, and P.J.H. Bloemen, J. Magn. Magn. Mater.**93**,562(1994).

[2] S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. **67**, 3598 (1991).

[3] H. Yanagihara, K. Pettit, M. B. Salamon, Eiji Kita, and S. S. P. Parkin, J. Appl. Phys.**81**, 5197(1997).

[4] S. S. P. Parkin, 私信

[5] 磁性体ハンドブック，近角聡信，太田恵造，安達健五，津屋昇，石川義和編，朝倉書店 (1975).

[6] T. Shinjo "Magnetisms and Structure in System of Reduced Dimension", ed. R. F. C. Farrow, Plenum Press, New York, 323 (1993)

[7] H. Fujiwara, and M. R. Parker, J. Magn. Magn. Mater.**135**,23(1994).

[8] M. Ruhrig, R. Schafer, A. Hubert, R. Mosler, J. A. Wolf, S. Demokritov and P. Grünberg, Phys. Stat. Solidi (a) **125**,635 (1991).

[9] J. C. Slonczewski, Phys. Rev. Lett. **67**, 3172 (1991).

[10] J. C. Slonczewski, J. Appl. Phys. **73**, 5957(1993).

[11] K. Pettit, S. Gider, S. S. P. Parkin, and M. B. Salamon, Phys. Rev. **B 56**,7819(1997).

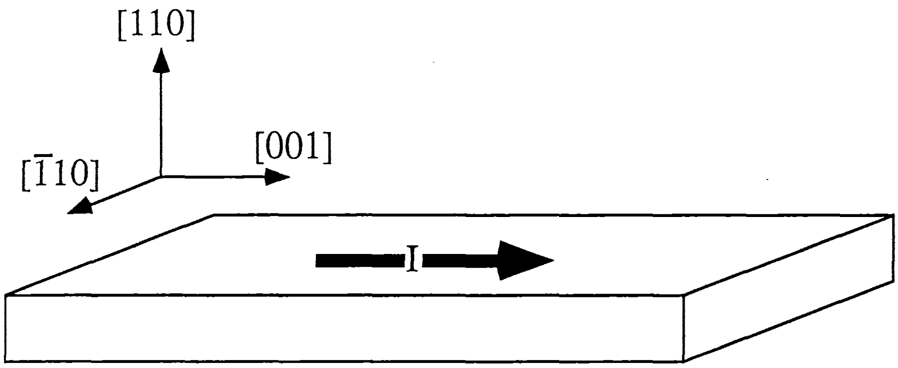


図 2.1: Co/Ir(110) 人工格子の測定時の面方位

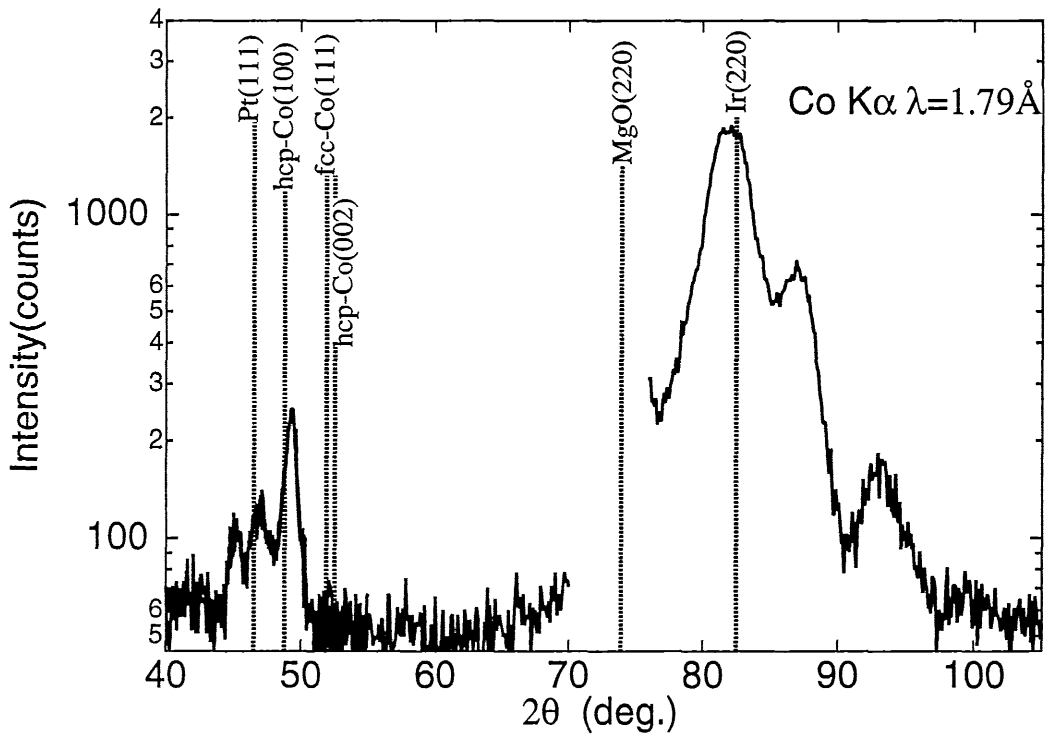
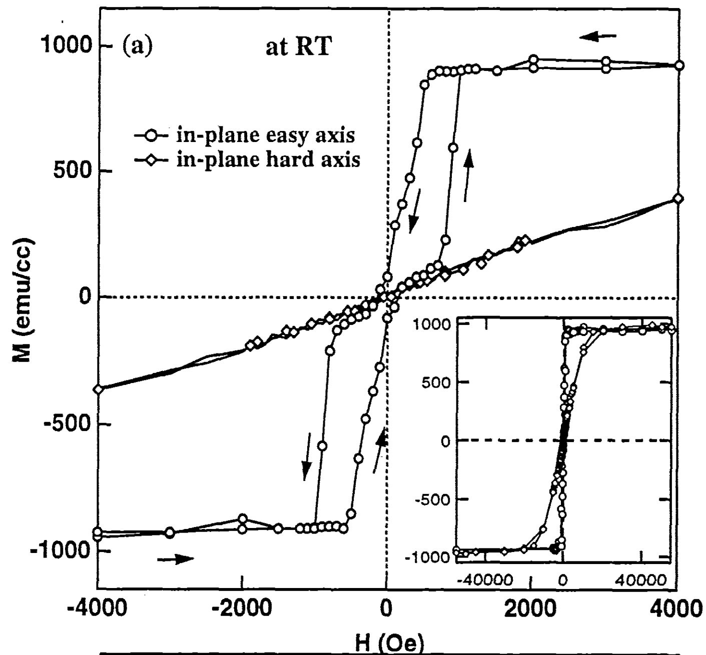


図 2.2: Co/Ir(110) 人工格子の XRD$\theta - 2\theta$ scan の結果. 線源:Co$K - \alpha\lambda = 1.79\AA$



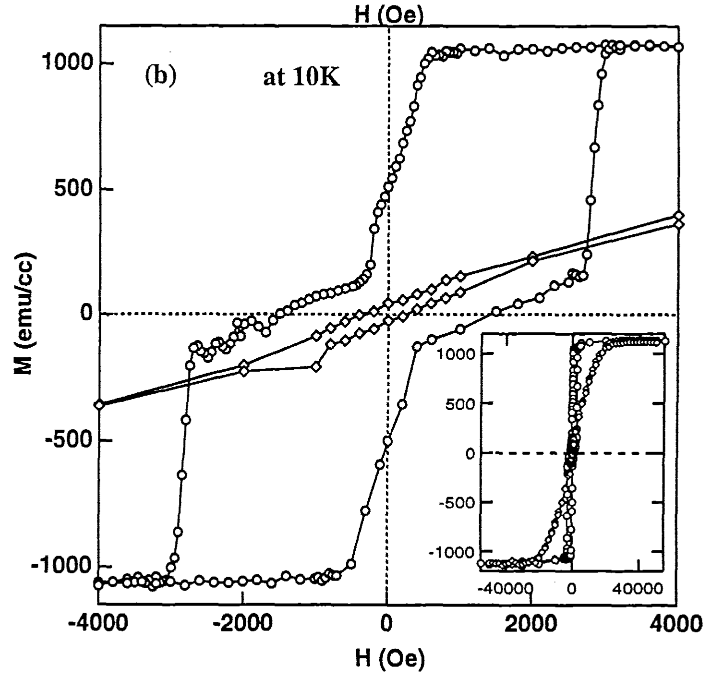


図 2.3: Co/Ir(110) 人工格子の MH 曲線．(a) 室温，(b)10K での測定結果．◇ ： $H//\mathrm{MgO}[1\bar{1}0]$, ○ ： $H//\mathrm{MgO}[001]$．内部の図は $\pm 50kOe$ のスケールでプロットしたものである．

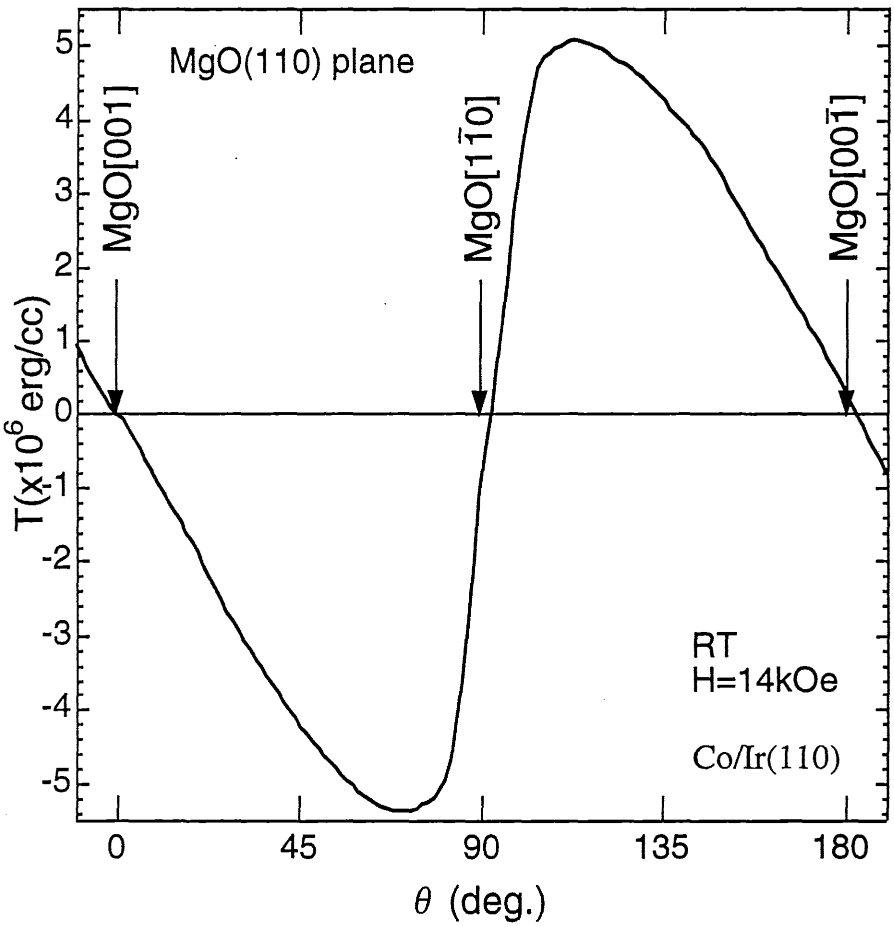


図 2.4: 室温に於ける Co/Ir(110) 人工格子の磁気トルク曲線．印加磁場は $H = 14$kOe

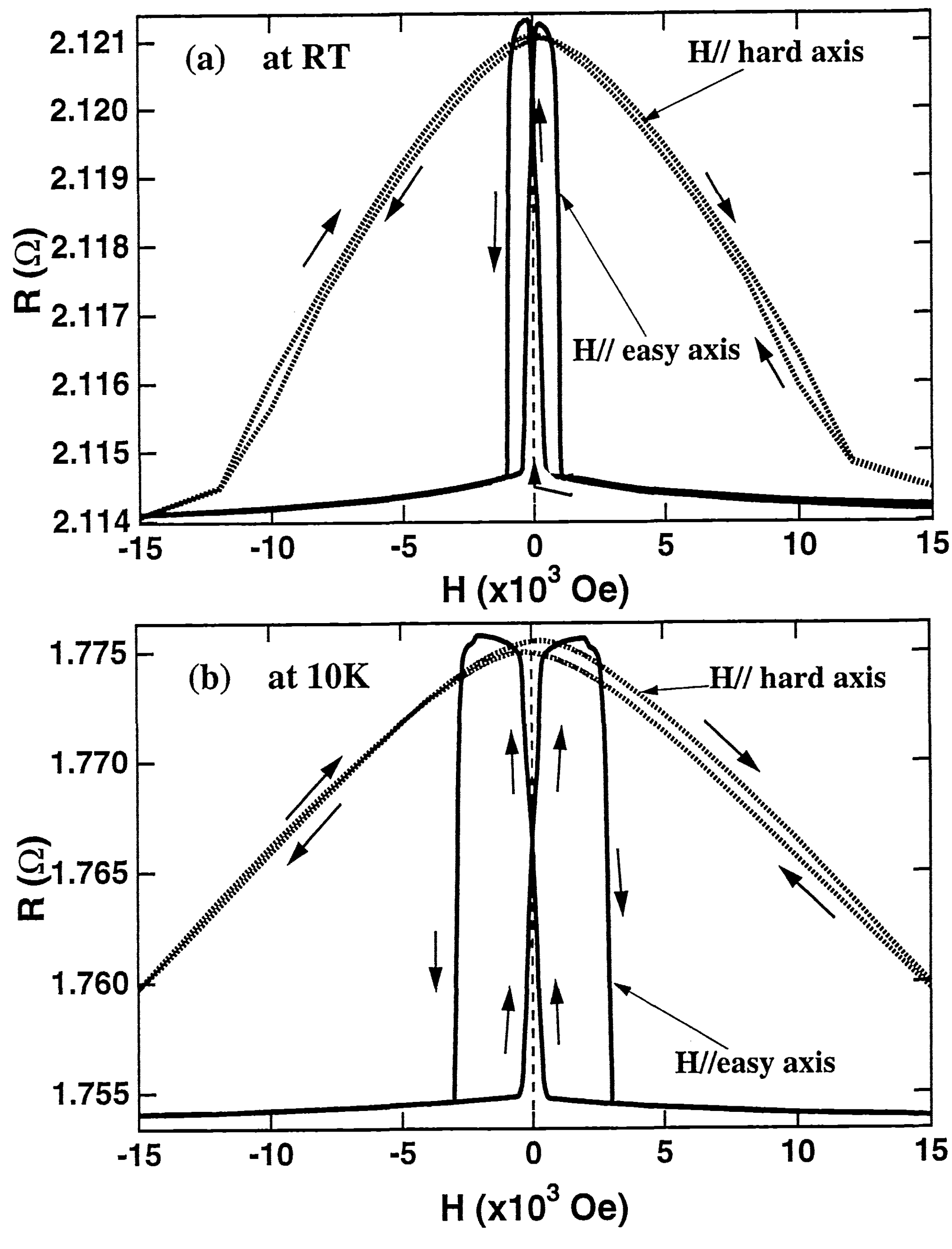


図 2.5: Co/Ir(110) 人工格子の磁気抵抗曲線. (a):RT, (b):T=10K.

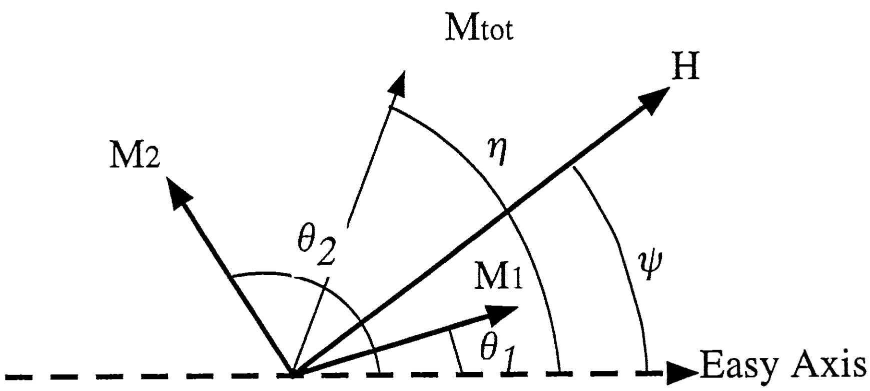


図 2.6: 拡張 SW モデルでの隣り合う磁性層 $M1, M2$ と外部磁場 H の相対的な位置関係を示した概略図．Mi,H はすべて同一面内にその成分を持つとする．

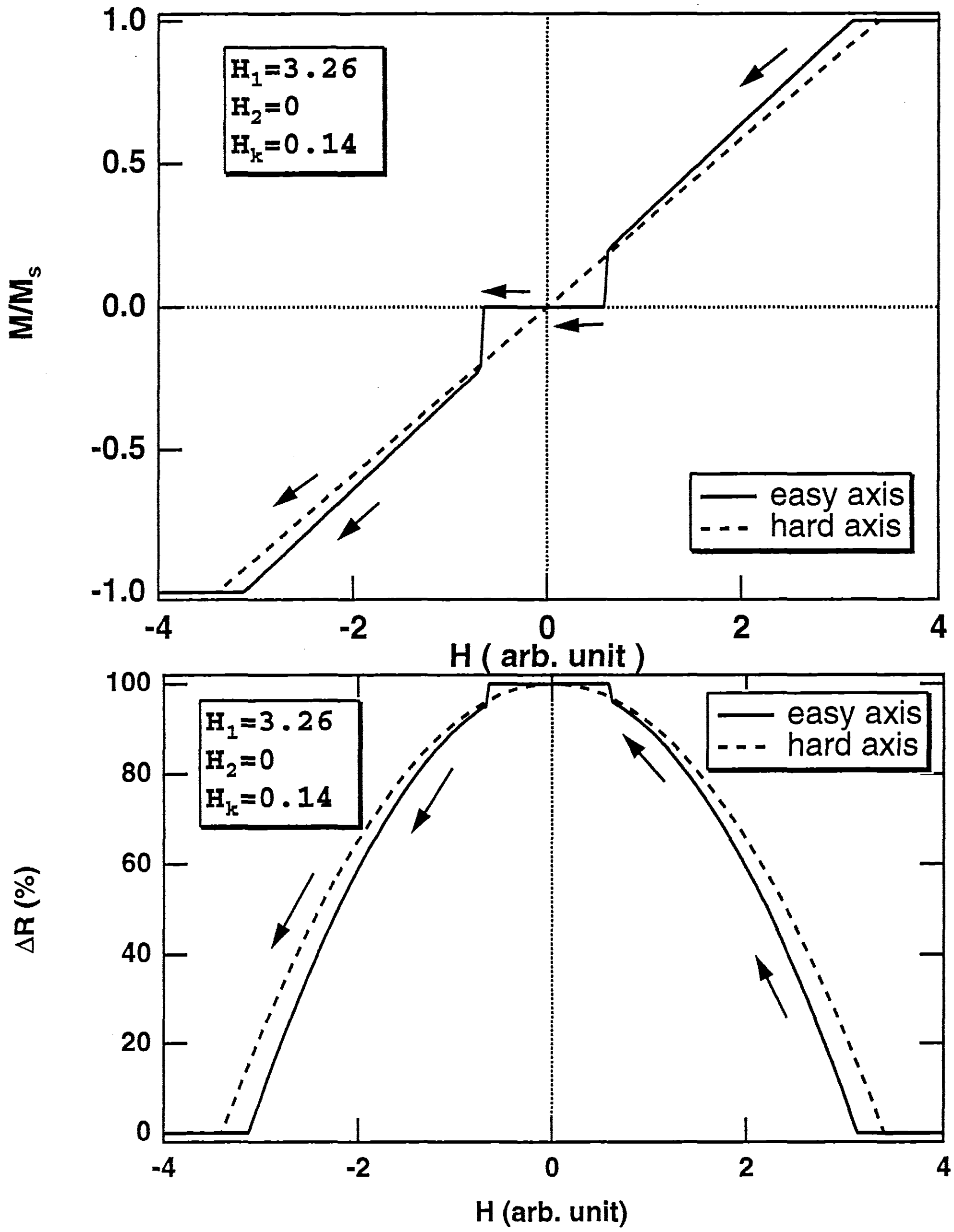


図 2.7: MH 曲線及び MR 曲線のシミュレーションの結果．それぞれのパラメータは $H_1 = 3.26, H_2 = 0, H_k = 0.14. H_{s,h} = 3.4(a.u.)$ となるように各パラメータを選んだ．

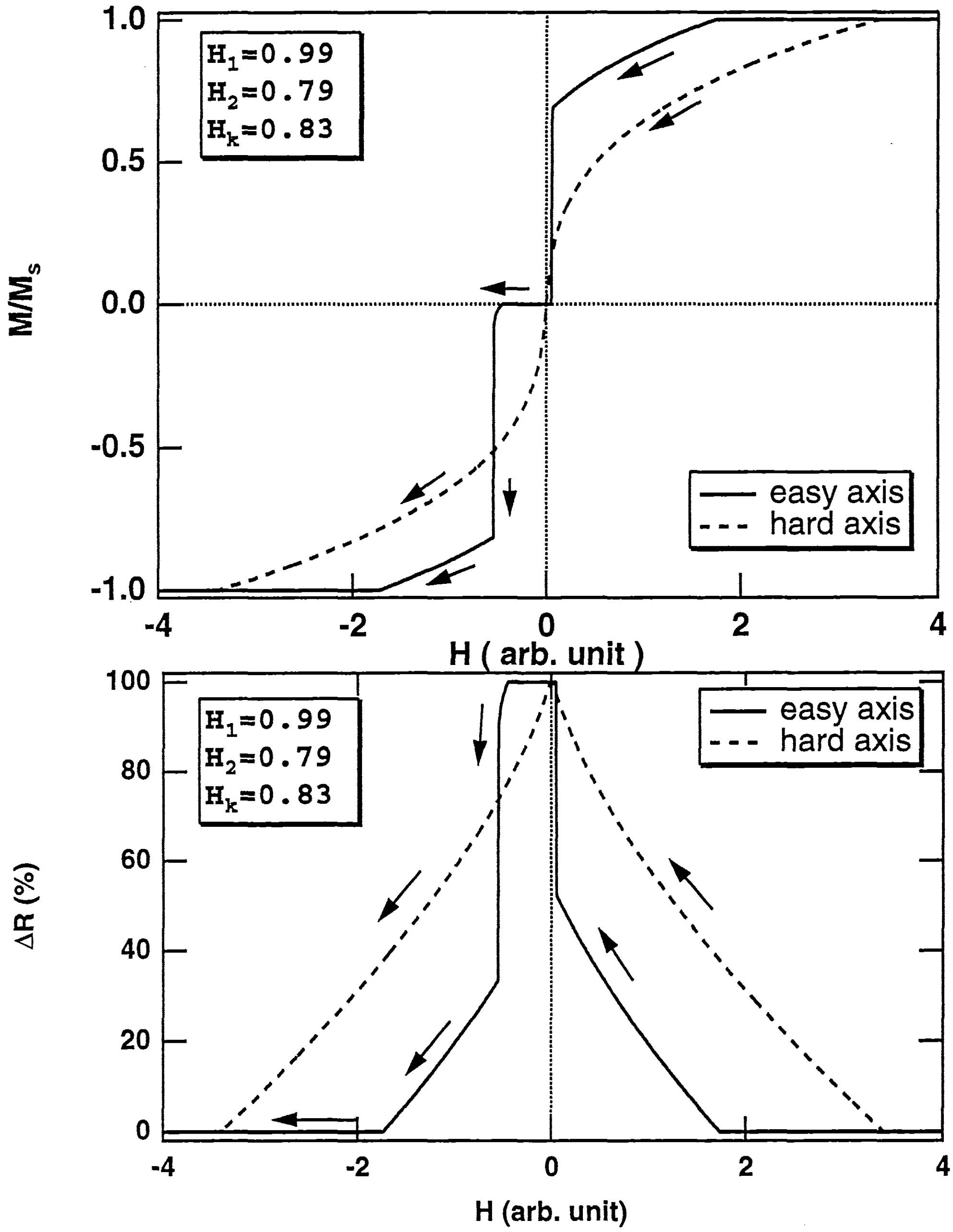


図 2.8: MH 曲線及び MR 曲線のシミュレーションの結果．それぞれのパラメータは $H_1 = 0.99, H_2 = 0.79, H_k = 0.83. H_{s,h} = 3.4(a.u.)$ となるように各パラメータを選んだ．

第3章 MBE法によるCo/Ir(001)人工格子の作製とその磁性

3.1 はじめに

Fe/Cr や Co/Cu 多層膜において Cr(Cu) 層を介して隣り合う Fe(Co) 層間に間接的な反強磁性結合が働くことが発見されて以来 [1],[2] 実験的，理論的側面からこの磁性層間結合に関する研究が盛んに行われてきた．非磁性層に貴金属を用いた人工格子ではその理論的取り扱いが他の遷移金属に比べて容易であった事や，GMR が大きい系であったことから，貴金属のスペーサに関して特に積極的に研究された．もともとこの層間結合はスパッタ法により作製された試料で発見されたため，その結晶配向との関係が明らかでなくその後 MBE 法により結晶配向を制御したような人工格子が必要とされ，作製，評価されるようになったが，1993 年頃まではスパッタ法による試料が示したような反強磁性結合や層間結合の振動であるとか，或いは大きな MR 変化といったものが不思議と観測されないという期間があった．この原因としては MBE により作製した試料では評価できないような小さなピンホールが存在すると言ったように多層膜構造自体に欠陥があり，その結果強磁性層間で直接結合が生じてしまい隣り合う強磁性層間で反強磁性配列が見られないということであった．その後 MBE 法による人工格子のエピタキシャル成長技術が発展し，今日では様々な系で単結晶的人工格子が作製されるようになり，スパッタ法の試料では扱えなかったような細かな議論も可能となった．いずれにしても単結晶人工格子に関する研究は Fe/Au 人工格子を代表とする貴金属系，或いは反強磁性秩序という観点から興味深い Fe/Cr 系が中心であり，これらの系ではミスフィットも少なく理論との比較が容易であることも盛んに研究される要因である．

非磁性金属層として Ir を用いる理由は 1 章に述べたが，反強磁性結合を持つ Co/Ir が既に報告されている [20]．しかしこれまでのところ Co/Ir のエピタキシャル人工格子に関しては報告は全くされていない．残念ながら層間結合や GMR に限らず磁性人工格子で Ir を扱った研究すらも非常に希有である．具体的には Andrieu らによる Fe/Ir 人工格子ぐらいであ

り，彼らは主にその結晶構造と磁性に関する研究を行っているが [3]，層間結合に注目したものではない．層間結合や GMR を研究するのに適した人工格子の作製においては，基板及びバッファ層の物質と成長条件が試料の品質を決める重要な因子であるためまず作製条件の最適化から始める必要がある．

2 章でスパッタ法で作製した Co/Ir 人工格子について述べたが，その構造が XRES の測定には不向きであったため，MBE 法を用いて試料の作製を行ったわけである．スパッタ法では X 線回折で観測される構造は非常に荒れているが，層間結合や GMR といった性質ははっきり見える．上述したように一見良好な構造を持つと考えられるような MBE 法による人工格子は，観測するのが困難であるようなピンホールが生じやすい．したがって X 線回折で良好な構造をしめし，かつ層間結合がはっきり見えるような Co/Ir 人工格子を作製する事が本章での目的となる．

3.2 実験方法

3.2.1 成膜装置

試料作製は超高真空蒸着装置（日本シード研究所社製;SEO-5）を用いた．以下にこの蒸着装置の説明をする．装置は door valve によって成膜室，および導入室に別れており，超高真空状態を保ったまま試料の出し入れが可能になっている．

排気系はロータリーポンプ（RP），ターボ分子ポンプ（TMP），チタンサブリメーションポンプ（TSP），そして液体窒素シュラウドから構成されている．RP で荒引きを行った後 TMP で排気を行い，さらにチャンバーのベーキングを行うことによって真空度は $\times 10^{-10}$Torr 台になる．本装置の概略図を図 3.1 に，また写真を図 3.2 に示す．本装置には蒸発源として 10kW の e-gun と 3kW の e-gun 及び effusion cell を備えている．3kW の e-gun は 3 連の坩堝を備えており，坩堝の選択により 3 種類の物質を蒸着出来る．effusion cell(EPI 社製）は坩堝にタングステンを使用し，2000°C まで加熱することが可能である．蒸発源ごとに水晶振動式膜厚計が設置されており，基板とそれぞれの蒸発源との間にはそれぞれ独立のエアシャッターがついている．蒸着制御器（Leybold-Inficon IC-5）により成長速度をモニタし，e-gun にフィードバックをかけ，成長速度を制御して目標膜厚に到達したところでシャッターを閉じるようになっており，人工格子の成長はほぼ自動で行われる．

成長レートを校正するためにそれぞれの蒸着物質に対して，設計値で約 1000 Å の厚さの単一物質層の薄膜を作製し，この膜厚を実測することにより，基板位置と膜厚計の設置位置に依存してきまる tooling factor を決定した．実際には，校正用薄膜はスライドガラス上の一部分にカバーガラスを乗せこれをマスクとして，基板上に段差のついたものを作製する．この段差を接触式段差膜厚計（Dektak II; Sloan）を用いて測定した．そしてその後同じ試料を多重反射干渉 (MBI) 法 [4] をもちいて測定するため，抵抗加熱法により高反射率である Ag 薄膜を蒸着した．光源には水銀灯を用いてフィルターを使用して $\lambda = 5461$Å の単色光で現れる干渉縞から段差の高さを決定した．どちらの方法でも 5%程度の膜厚誤差であったので tooling factor は接触式段差膜厚計により測定した値を用いて決定した．なお Ir の校正用試料として直接 Ir をスライドガラス基板上に蒸着した場合には膜質は粗く，肉眼で確認できる程の大きなピンホールが数多く見られた．そこで Ir 用校正試料に関してのみ，一度バッファ層として Fe を 10 Å 程度蒸着してから，Ir を約 1000 Å 蒸着しこれを測定した．

成長表面観察用に蒸着装置には反射高速電子線回折 (RHEED) が装備されている．電子線の加速電圧は 15kV で，反射パターンを基板を挟んで電子銃の反対側にあるスクリーンで観察する．スクリーンに映し出された像はポラロイドカメラにより記録する．

3.2.2 成膜条件の決定

一般的に薄膜のエピタキシャル成長を行う場合，エピタキシャル条件としては基板物質の種類，蒸着温度，蒸着速度，基板表面の汚れ，チャンバー内の残留ガスが挙げられる．当然，それぞれの条件は成長させる物質に強く依存し，人工格子のようなヘテロエピタキシャルの場合は成長条件の最適化は困難であることが容易に想像される．そこで本研究ではまず，上記の成長条件の決定から始めた．チャンバー内の残留ガスの種類やその分圧に関しては，成膜装置に依存するためこれ以外のパラメータの最適化につとめた．バッファ層の品質は，反射高速電子線回折 (RHEED) を *in situ* で行い，あるいは成長後 XRD 測定，そして直接膜の色を見ることで判断した．実際に用いた基板には表 3.1 に示すものを試みた．最終的にはフルウチ化学社製の MgO(001)epi 用研磨済み基板を用いることとした．またバッファ層として試みたものを表 3.2 に挙げる．MgO 基板の前処理はリン酸 (35 vol.%) 中で 3 分間超音波洗浄をした後，純水で十分すすぎ，最後にエタノールでもう一度洗浄を行う処理を試みた

が，未処理のものと較べて著しい差はみられなかったので，実際に試料を作製の前処理としては基板加熱のみとした．

a	substrate	orientation	surface	supplier
a	MgO	(001)	劈開	フルウチ化学
b	MgO	(001)	光学用研磨	高純度化学
c	MgO	(001)	epi 用研磨	ESPI
d	MgO	(001)	epi 用研磨	フルウチ化学
e	MgO	(011)	epi 用研磨	フルウチ化学
f	GaAs	(001)		三菱化学
g	GaAs	(111)		三菱化学
h	sapphire	R		フルウチ化学
i	ガラス			コーニング

表 3.1: エピタキシャル成長を試みた基板の種類

substrate	buffer layer	subst. temp.
a e h	Fe 5 Å/ Pt 50 Å	700 ~ 120°C
a h	Pd 50 Å/ Ir 300 Å	750 ~ 150°C
a e	Pd 50 Å/ Ir 500 Å	700 ~ 120°C
a e	Fe 10 Å/ Ag 500 Å/Ir 300 Å	600°C
a c	Fe 10 Å/ Pd 50 Å/Ir 600 Å	600°C
c	Fe 12 Å/ Ag 1000 Å	600°C
a e	Fe 10 Å/ Ag 500 Å/Ir 300 Å	550 ~ 70°C
c h	Fe 12 Å/ Pd 100 Å/Ir 400 Å	600°C
f g	Ag 200 Å	600°C
d e	Fe 12 Å/ Ir 600 Å	600°C
d e	Fe 12 Å/ Pd 50 Å/Ir 600 Å	600°C
d e	Fe 12 Å/ Pt 50 Å/Ir 600 Å	600°C

表 3.2: 試みたバッファ層

人工格子膜は直接基板の上に成長させる場合と，バッファ（緩衝）層を介して成長させる場合がある．バッファ層の役割は基板と人工格子との間の格子歪みを緩和したり，界面を平坦にしたりするためのもので，エピタキシャル成長膜に限らず良質な膜を得るのに不可欠なものである．層間結合の振動がスパッタ法で作製した試料で発見されてからも，結晶構造としては良好であると考えられてきた MBE による人工格子では層間振動が観測されず，その MR も非常に小さいという，一見矛盾した報告が 1993 年前後まで続いた．今日ではこの原

因は磁性層間にピンホール接触などが存在し，磁性層同士が直接結合したためであると考えられているが [5]，近年では人工格子成長の前段階として基板上に厚いバッファ層を成長させるなどして，十分にフラットな表面を作製した後に人工格子の成長を行うことにより，MBE法でも層間結合振動が観測され，MR も飛躍的に大きな値を示す事が報告されている．以上のような理由で良好な結晶構造を得るためにいくつかの金属をバッファ層として試みた．表 3.2 にそれぞれの基板と，バッファ層そしてその時の基板温度を挙げた．試行錯誤の末，最終的にはエピタキシャル用研磨済み MgO(001) 基板上に Fe 12 Å/ Pt 50 Å/ Ir 600 Å を基板温度 600°C で成長させたものを採用した．

Farrow らは [6]，サファイア上に Pt をシード層（バッファ層）として成長させた場合，基板温度が 600° C では約 15 Å までは島状に成長するが，この厚さを越えると島同士が癒合し，約 30 Å 程度で十分に高い結晶性を持つようになり伝導特性も優れた連続膜になることを示し，そしてこのような薄膜は磁性多層膜や合金のバッファ層に有効である理想的な膜であることを提案している．また基板 MgO(001) 上には十数 Å の bcc-Fe(001) が平坦に成長することが知られており [7]，そこでまず Fe を 12 Å 成長させその後に Pt を 50 Å 成長させた．実際に Pt を挟んだバッファ層と挟んでいないバッファ層あるいは Pt の代わりに Pd を挟んだ層を比較した場合に，その上に成長させた Ir(002) の XRD 反射のモザイク角は小さくなっていることを確認している．目的の人工格子 Co/Ir は強磁性層厚を一定として非磁性 Ir 層厚を変化させた一連の試料であるので，Ir 層の歪みが少なくなるようバッファ層として最後に Ir を積層した．一般的にエピタキシャル成長の場合蒸着物質が数原子層であればその原子配列は下地層と同じなることが知られており，格子定数も数十原子層まで下地層の影響を受けるとされている．そこでなるべくバルクと同じ格子定数を持ちかつ平坦な Ir 層を得るためにその層厚は 600 Å とした．経験的にエピタキシャル成長温度（基板温度）(T_g) と，蒸着物質の融点 (T_m) の間には，

$$T_g = 0.39T_m \tag{3.1}$$

の関係が成り立つといわれている [8]．Ir の融点は 2720K と遷移金属の中でも非常に高く，式 3.1 によれば 800°C 程度の基板温度が望まれるが，成膜装置の制約から 600°C の基板温度とした．この装置には蒸発源として e-gun と高融点用 effusion cell が備わっており，蒸着物質の中で最も高融点を持つ Ir は出力の大きな 10kW の e-gun を用いて蒸着をおこなった．

また Co に関しては effusion cell，3kW の e-gun のどちらでも使用可能であるが，取り扱いの簡便さから最終的に e-gun をもちいることにした．Fe，Pt ともに Co と同じ e-gun を使用し，effusion cell は使用せずに試料作製をおこなった．

3.2.3 試料作製

試料作製に用いた各蒸着物質の純度は以下の通りである．Ir;99.95%（田中貴金属），Co;99.99%（ジョンソンマッセイ），Fe;99.9%（フルウチ化学），Pt;99.99%（田中貴金属）．典型的な条件として到達真空度は $\sim 1 \times 10^{-9}$Torr であった．基板ホルダーには $5 \times 10 \times 0.5mm^3$ の単結晶エピタキシャル成長用片面研磨済み MgO(001) 基板（フルウチ化学），同 MgO(110) 基板そしてコーニングガラスを用いた．このように 3 種類の基板に Co/Ir 人工格子を成長させたが，実際に測定をおこなったものは MgO(001) 上に成長したもののみである．基板を成膜室に導入した後，基板温度を 600°C まで上昇し，数時間「ガス出し」をおこなう．基板温度を上昇させた直後は成膜室内の真空度は低下し，$\sim 2 \times 10^{-7}$Torr 程度となる．数時間後には真空度は再び向上しバッファ層積層前には $\sim 2 \times 10^{-8}$ 程度になった．基板表面からの RHEED パターンがきれいなストリークとなった事で，基板表面が十分清浄であると判断した．つづいて前節で述べたように基板温度を 600°C としてバッファ層として Fe12 Å/Pt50 Å/Ir600 Å を成長させた．Fe,Pt ともに毎秒 0.1 Å の成長速度を目標として制御した．また Ir は毎秒 0.2 Å で制御をおこなった．Ir は非常に高融点な物質でありその蒸気圧曲線も他の物質に較べて低いため，蒸着時には非常に高出力を投入する．その結果，熱輻射によりチャンバー内の e-gun 付近の温度が上昇し真空度は低下してしまう．最終的にバッファ層を成長し終えたときには，$\sim 2 \times 10^{-7}$ 程度まで下がってしまう．この後基板温度の設定を 60°C にして実際に基板温度が下がるのを待つ．約一時間後に所定の基板温度になったことを確認して Co/Ir 人工格子の成長を開始する．このときの真空度はおおよそ $\sim 8 \times 10^{-9}$Torr である．なお成長中は RHEED で全過程をモニタし，そのパターンを確認した．

人工格子は Co 層から開始し，[Co7 Å/Ir (t_{Ir} Å)] を一周期として一部の試料を除き 50 周期積層した．Co 層厚が 10 Å 以上の試料では層成長を意味する RHEED のストリークパターンは数周期で消滅し，島状成長に起因するスポット的なパターンとなりその後リング状にな

ることから，Co 層はなるべく薄く，しかもある程度の磁化が得られるように 7 Å とした．一方 Ir 層厚 t_{Ir} は 5 Å$\geq t_{\mathrm{Ir}} \geq$ 34 Å の間で設計値を変えて合計 27 試料作製した．作製した試料の模式図を図 3.3 に示す．

3.2.4 測定方法

本節では作製した試料の構造および磁気的性質の評価のために本研究でおこなった測定について述べる．試料成長時には蒸着器備え付けの RHEED をもちいて膜表面の観察をおこなった．入射電子の加速電圧は 15kV であり，電子線は基板 MgO[100] 方向から入射し，[$\bar{1}$00] 方向にスクリーンが位置するような配置である．なお本章では図 3.4 のように膜面垂直方向（成長方向）を [001] 方向とし，基板 MgO の劈開面が [100]，[010] 方向に一致するように定義している．成膜後の構造評価には粉末用二軸 X 線回折計（RINT2200; Rigaku）を用いた．X 線源には Cu $K\alpha$ を使用し，試料はサンプルホルダーにコンパウンドで接着し測定をおこなった．二軸 X 線回折計（二軸 XRD）用のサンプルホルダーは薄膜用にあつらえたもので，実際に試料をサンプルホルダーに乗せた様子を図 3.5 に示す．

この二軸 XRD 測定では成長方向 $(00l)$ の構造に関する平均的情報しか得られない．そこで筑波大学物理工学系大嶋研究室の 4 軸X線回折計（MODOKI，図 3.6）を用いて，その散乱ベクトルが膜面垂直方向以外のいわゆる非対称反射に関する測定 [9] をおこなった．使用した X 線源は回転陽極型 X 線管から発生した Cu $K\alpha$ であり，入射ビームは縦湾曲 HOPG（グラファイト）モノクロメータの 00 · 2 反射によって単色化されている．この単色化したビームを $1.0mm\phi \times 130mm$ のコリメータを通して試料に当てた．この回折計は，半導体検出器（SSD）を X 線検出器に使用しており，シンチレイションカウンタに較べ S/N の点で優れている．4 軸回折計のそれぞれの角度分解能は ϕ 軸のみが 0.002deg.，他の $2\theta, \omega, \chi$ 軸は 0.005deg. である．図 3.7 に光学系の模式図を記す．

非対称反射の測定以外にも透過条件での回折 [10] で散乱ベクトルを人工格子の面内にとることにより成長面内方向の情報を得る方法もあるが，そのためには基板を取り除かねばならない．本研究では基板に厚さ 0.5mm の MgO を使用しており，透過条件で測定するのに十分なほど薄く基板を加工することの困難さからこの方法は見送った．

次に試料の磁気的性質に関する測定について述べる．磁化測定は SQUID 磁力計（Quantum

Design 社製；MPMS R2）を用いておこなった．磁場は ±50kOe の範囲で印加した．いくつかの試料に関しては測定温度を下げて磁化曲線を得たが，ほとんどの試料は室温 (RT) でのみ測定をおこなった．試料の基板として用いた MgO の純度は 99.9%であり，数 10 ～ 100pmm のオーダーで磁性不純物特に Fe を含んでいる．したがって低温での測定は，この基板での磁性不純物の影響が大きく現れる．しかもこの磁性不純物の寄与は基板のロット毎に異なり，作製したすべての試料で定量的な磁化の大きさを決定することは現実的ではないため，磁化の評価を定量的に行う事はできなかった．

磁気抵抗 (MR) の測定は試料の長手方向に 4 箇所並べて Au 線で電極をとりつけ，通常の 4 端子法でおこなった．15kOe まで磁場を印加できる電磁石を用いた測定では，0.1mA の直流電流を用いて測定をおこなった．またいくつか非常に飽和磁場の大きな試料に関しては，科学技術庁金属材料技術研究所内に設置されている Quantum Design 社製 PPMS を使用し，±90kOe の磁場での MR を交流 4 端子法で測定した．いずれの場合も測定温度は RT および 10K である．磁場はすべて面内に H//MgO[100] となるように印加した．

3.3 実験結果および考察

3.3.1 構造評価

図 3.8 に MgO(001)/Fe12 Å/Pt50 Å/Ir600 Å/[Co7 Å/Ir15 Å]$_{50}$/Ir35 Å の RHEED パターンを示す．図 3.8(a) は成膜室に基板を導入し，基板温度 (T_s) を 600°C に上げて 3 時間後の MgO(001) 面からの反射である．はっきりとしたストリークは MgO(001) 表面の平坦性を示している．つづいてバッファ層として Fe 12 Å を積層し始めると MgO で見えていた強くシャープな反射は消失し，パターンはスポット的になり bcc-Fe の構造を示した．このことから MgO(001) 上の 12 Å の Fe は bcc 構造になり連続膜ではなく島状に成長していることが分かる．さらに Pt を 50 Å 積層すると再びうっすらとストリークパターンが現れた．Farrow らによれば [6]，Al_2O_3(0001) 上で Pt はおおよそ 30 Å で連続膜になると報告しており，MgO(001) 上であっても概ね同様の結果が得られているものと考えられる．ここからさらに Ir を 600 Å 成長させるのであるが，その厚さが 230 Å を越えたあたりで，ストリークは非常にはっきりとしたものになった．図 3.8 (b) は，600 Å 成長後の Ir 表面からの反射であり，(a) で得られた MgO(001) からのパターンとほとんど同じものになった．ただ

し (a) とくらべてストリークの幅は広く，またその間隔も若干広がっているように思われる．fcc-MgO の格子定数は $a_{\mathrm{MgO}} = 4.21$ Å であり一方 Ir のそれは $a_{\mathrm{Ir}} = 3.84$ Å であるので，ストリークの間隔が MgO に較べて Ir の方が広く見えるのは妥当である．以上のことからバッファ層の Ir は基板 MgO と同じ面方位で成長し，そのコヒーレンスは基板に較べて劣っていることが分かる．ストリークパターンのまま Ir 層が成長していることから，このバッファ層の Ir の成長過程は 2 次元的な層状成長（Frank-van der Merwe 型）で非常に平坦な表面を持っていることを意味している．なおストリークの輝度は基板に較べて弱かった．

一般的に平坦な下地上に金属をエピタキシャル成長させると，多くの場合表面原子の再構成が起きると言われており [11]，Ir の場合も (001) 面で 5×1 構造になるという報告がある．5×1 の再構成が起きた場合その RHEED パターンは再構成のない 1×1 のストリークの間に 4 本の弱いストリークが見られるはずであるが，Ir を成長する過程を通してそのようなものは見られなかった．観察された RHEED パターンは MgO を基板としており，600 Å の膜厚でも下地の影響を受けてしまいその結果として再構成が生じなかったのか，或いは成長していく過程で成膜室内の真空度が低下し，Ir 表面にガス吸着が起こり再構成が生じなかったのか定かでないが，いずれにしても表面状態は非常に成膜条件に敏感でありこれ以上の議論はしない．

次に Co/Ir 人工格子成長時の RHEED 像について述べる．バッファ成長後基板温度を 60°C に下げ Co 層から成長を始めるとストリークはにじみその輝度はさらに低下する．Ir 層を成長し始めるとその輝度は強くなりストリークもはっきりとしてくる．図 3.8(c) には 10 周期目の Co 層からの RHEED パターンを，そして図 3.8(d) には同じく 10 周期目の Ir 層からのパターンを示す．この傾向は５０周期目まで変化せず（図 3.8(e),(f)），また Ir 層厚の設計値を変えても顕著な違いは見られなかった．以上のことから Co，Ir ともに基板の面内の格子間隔を保ちつつ 2 次元的な層状成長をしていることが確認された．

いくつか代表的な試料の 2 軸 XRD の測定結果を図 3.9 にしめす．矢印で示したピークは，バッファ層に起因するものであり，$2\theta \approx 47.4$ deg. にはシャープな Ir(002) 反射がある．$2\theta \approx 23$ deg. 及び $2\theta \approx 73$ deg. 付近にはブロードなピークが見られこれはバッファ層に Pt を挟んだときのみに現れることから，これらの弱い反射もバッファ層のものであることが分かる．$2\theta \approx 42.95$ deg. には，基板に用いた MgO(002) の強い反射があり，この付近の測定はおこなっていない．小角側は t_{Ir} の小さな試料に関しては測定角度を $2\theta = 1$ deg. からと

したが，t_{Ir} の大きな試料では小角での強度が非常に強くそのため $2\theta = 3$ deg. 程度からの測定とした.

全体を通して長周期構造を反映した超格子反射が高次にまでみられ，またその強さは $2\theta = 0$ deg. と，$2\theta \approx 47.4$ deg. の Ir(002) 反射を中心にして広がっていることから膜面垂直方向に (002) 配向していることが分かる．$t_{Ir} = 5$ Å の超格子反射は他のものに較べ幅広く強度も弱い.

この 2 軸 XRD の結果のみでは膜面垂直方向のみに配向しているようないわゆる繊維配向膜であるのか，あるいは 3 次元的に配向した単結晶人工格子であるのか判断できないが，*in situ* で観察した RHEED パターンから本研究で作製した Co/Ir 人工格子は膜面内と成長方向とで 3 次元的に配向した単結晶的な人工格子であることが分かった.

バッファIr 層の成長方向での面間隔が，bulk のそれとほとんど等しいこと，そして RHEED で観察されたストリークパターンが示すように，基板 MgO に対して Ir 層は同じ配向性を持って成長していることから，人工格子 Co/Ir の成長過程においてもバッファIr 層と同じ fcc 構造を保っているものと考えられる．一方 Co 層に関しては，その構造は RHEED と図 3.9 からは決定できない．bulk Co の結晶構造は hcp 構造であるが，薄膜，或いは微粒子化した場合には一般的には fcc 構造になることが多い．さらに Prinz らによれば下地層や温度，成長速度を選ぶことにより bcc 構造を取ることが報告されている [12],[13].

バッファ層の Ir の格子歪みが表面では十分に緩和されて bulk と同じ格子定数 $a_{\mathrm{Ir}} = 3.84$ Å になっていると仮定すれば，fcc-Co の格子定数は $a^{001}_{\mathrm{fcc-Co}} = 3.54$ Å であるから，fcc-Ir[010](001)//fcc-Co[010](001) の配向を持って成長すればそのミスフィットは Ir に対して $\approx -8\%$ となる．一方 Co が bcc 構造であったとすれば $a_{\mathrm{bcc-Co}} = 2.82$ Å[13] であり，面内で fcc-Ir[010] に対して bcc-Co[010] 方向が 45° 回転して成長する事により，fcc-Ir[010](001)//bcc-Co[110](001) の配向になり，そのミスフィットは Ir に対して $\approx +3\%$ におさまる（図 3.10）.

はたして Co の構造は fcc であるのか或いは bcc であるのか考察する．単結晶人工格子の X 線回折モデルの中でも最もシンプルなステップモデルを考える．まず A 原子と B 原子からなる人工格子を考えて，原子散乱因子を $f_{A(B)}(Q)$，原子面密度を $\eta_{A(B)}$，一周期あたりの積層原子数を $N_{A(B)}$，一周期の長さを Λ とすると，散乱強度は以下のようになる.

$$I(Q) \propto |F(Q)|^2 \cdot \frac{\sin^2(NQ\Lambda/2)}{\sin^2(Q\Lambda/2)} \tag{3.2}$$

$$
\begin{aligned}
|F(Q)|^2 &= f_A^2(Q)\eta_A^2 \frac{\sin^2(N_A Q d_A/2)}{\sin^2(Q d_A/2)} + f_B^2(Q)\eta_B^2 \frac{\sin^2(N_B Q d_B/2)}{\sin^2(Q d_B/2)} \\
&\quad + 2 f_A(Q) f_B(Q) \eta_A \eta_B \frac{\sin(N_A Q d_A/2)}{\sin(Q d_A/2)} \frac{\sin(N_B Q d_B/2)}{\sin(Q d_B/2)} \cos(\Lambda Q/2) \qquad (3.3)
\end{aligned}
$$

ここで $d_{A(B)}$ は A(B) 原子層内での成長方向の面間隔である．ここで Q は散乱ベクトルの大きさを表し，$Q = |\mathbf{Q}| = 4\pi \sin\theta/\lambda$ である．式 3.2 から超格子反射の間隔は $\Delta Q = 2\pi/\Lambda$ となり，その強度は式 3.3 から $Q = 2\pi/d_A$，$Q = 2\pi/d_B$ を中心とした包絡線になることが分かる．図 3.9 を見ると超格子反射の強度は Ir(002) 反射に対応するピーク $2\theta \approx 47.4$ deg. を中心に広がっており，fcc-Co(002) 反射 $2\theta \approx 51.5$ deg.，或いは bcc-Co(002) 反射 $2\theta \approx 66.2$ deg. 付近に中心を持つような包絡線は見られない．Ir の原子番号が 77 で一方の Co は 27 であることから散乱能は 8 倍以上 Ir が大きい．しかもほとんどの試料は Co 層厚（=7 Å）よりも Ir 層厚の方が大きいために，Co の包絡線がのった超格子反射があったとしても，Ir の包絡線の中心と近い位置にあるため区別が付かない．そこで (004) 反射近傍に注目してみた．

図 3.11 には，それぞれ bulk fcc-Ir(004) 及び bulk fcc-Co(004) のピーク位置を矢印で示してある．図 3.9 と同様に 2θ が 94 deg. 付近に基板の強い反射あるため測定をしていない．また測定で用いた波長 Cu $K\alpha (= 1.541 \mathring{A})$ では bcc-Co(004) 反射に対応する位置は測定できない．図 3.11 によればある程度以上の Ir 層厚をもつ試料に関しては超格子反射の包絡線は 2 つに分離しており，その包絡線の中心位置は，一つは fcc-Ir(004) 反射の近傍で，もう一つは fcc-Co(004) 反射より僅かに広角側にあることがわかる．fcc-Co(004) の反射位置より広角側にずれているという事は，成長方向での Co 面間隔が bulk fcc-Co に較べて狭くなっていることを示しており，Co 層の構造としては成長方向の一軸が bulk に較べ縮んだ fcc 構造であることがいえる．Ir に比べて Co の格子定数が 8%も小さいことから Co と Ir の界面ではその整合性という点で面内の Co 原子間隔は拡がり，一方 Ir 原子間隔は狭くなっていると考えられる．ポアソン効果を考慮すれば，Co 層は面内で原子間隔が拡がった分，成長方向の原子間隔が縮んでいると考えられ，X 線の結果を支持している．

高角領域での XRD パターンで得られる超格子反射のピーク位置は，構造のコヒーレンス長 ξ が人工格子の周期 Λ に較べて大きい場合には

$$
2\frac{\sin\theta}{\lambda} = \frac{1}{\bar{d}} \pm \frac{n}{\Lambda} \qquad (3.4)
$$

であらわされる角度 2θ になる．ここで $\bar{d}$ は一周期の人工格子を構成する 2 層の格子定数の

平均面間隔である．

$$\bar{d} = \frac{\Lambda}{\bar{N_A} + \bar{N_B}} = \frac{\bar{N_A}\bar{d_A} + \bar{N_B}\bar{d_B}}{\bar{N_A} + \bar{N_B}} \tag{3.5}$$

$N_{A(B)}$ は人工格子一周期を構成する 2 種類の層の原子層数である．N_A，N_B ともに整数である時に式 3.2 や式 3.3 のステップモデルと同じ位置にピークが出現するが，ふつう整数原子層で制御された人工格子を作製することは難しく，高角域での超格子反射は一般的には式 3.4 で表される．式 3.4 において $n = 0$ の反射は人工格子を構成する 2 層の格子定数の平均面間隔に対応した反射であり，基本反射と呼ばれる．また $n \neq 0$ は基本反射の周りに現れる衛星反射という．

図 3.9 や図 3.11 のように得られた結果から，作製した人工格子の基本反射について考える．基本反射は式 3.5 から，$d_{\mathrm{Co}}^{(002)}$ と $d_{\mathrm{Ir}}^{(002)}$ に対応する反射の間に，或いは $d_{\mathrm{Co}}^{(004)}$ と $d_{\mathrm{Ir}}^{(004)}$ に対応する反射の間に存在する．取り扱いの簡単のために横軸を散乱ベクトルの大きさ $Q = 4\pi\sin\theta/\lambda$ で取りなおしたものを図 3.12 に示す．なお図 3.12 は一例として Ir 層厚 32 Å の試料のものを挙げてある．破線と一点破線の長さはそれぞれ $Q_{\mathrm{Ir}}^{002} = 2\pi/d_{\mathrm{Ir}}^{002} = 3.27\text{Å}^{-1}$，$Q_{\mathrm{Co}}^{002} = 2\pi/d_{\mathrm{Co}}^{002} = 3.55\text{Å}^{-1}$ に対応している．$Q = 7\text{Å}^{-}1$ 付近の (004) 面周りに注目すると $Q_{Ir}^{004} = 6.54\text{Å}^{-1}$ と $Q_{Co}^{004} = 7.09\text{Å}^{-1}$ の間にある超格子反射の中に一つ基本反射 $d(\bar{0}04)$ があり，同様に $Q = 3.5\text{Å}^{-}1$ 付近の (002) 面周りに注目すると $Q_{\mathrm{Ir}}^{002} = 3.27\text{Å}^{-1}$ と $Q_{\mathrm{Co}}^{002} = 3.55\text{Å}^{-1}$ の間にある超格子反射の中に一つ基本反射 $\bar{d}^{(002)}$ があるはずである．$\bar{d}^{(002)} = 2\bar{d}^{(004)}$ の関係が成り立つような基本反射はどの試料でも一意に決定し，たとえば Ir 層厚 32 Å の場合，人工格子の平均面間隔は $\bar{a} = 2\bar{d}^{(002)} = 3.71$ Å であることが分かった．

以上のようにして得られた平均面間隔 $\bar{a}$ を Ir 層厚 t_{Ir} に対してプロットしたものが，図 3.13 である．図 3.13 によれば t_{Ir} の増加と共に $\bar{a}$ が大きくなり，bulk Ir の格子定数に近づいていることが分かる．逆に t_{Ir} の小さな試料，特に $t_{Ir} = 5$ Å では $\bar{a}$ は fcc-Co の値よりも小さくなっている．各層に歪みがまったくなければこの結果は矛盾したものであるが，これらの試料は明らかに Co 層の成長方向の原子間距離（或いは面間隔）が縮んでおり，その結果として以上のような傾向を示しているものと考えられる．

つぎに 4 軸X線回折計を用いた測定結果を述べる．測定は $t_{Ir} = 15$ Å の試料についてのみおこなった．RHEED 観察及び二軸 XRD 測定によって，作製した試料は 3 次元的に配向した膜であることが推測されたが，実際に 3 次元逆格子空間を測定することにより，直接的に

作製した人工格子が単結晶人工格子であることを確認することがこの測定の主目的である．図 3.14 は，Ir(002) 反射近傍の $q_x - q_z$scan の結果である．成長方向すなわち Ir[001] 方向を q_z とし，Ir[100] 方向を q_x として測定したものでり，逆格子面で (010)* 面内の反射強度を示している．対数を用いて等強度線を描いてある．また XY 軸は共にバッファIr 層の面指数で規格化してある．$q_x = 0$ を切るような断面ではちょうど二軸 XRD で示した $(00l)$scan の結果と同じものになる．Q_x 方向の広がり，もっと正確に表現すれば逆格子原点を中心とした円弧に沿った広がりは "モザイク分散" 或いは "texture" の大きさを表しており，超格子構造の [001] 方向からの揺らぎを意味する．また Q_z 方向の広がりは結晶のコヒーレンス長或いは超格子の歪みに起因する．$q_x = 0, q_z = 2$ にはバッファIr 層の反射があり，その周りには計 3 点の超格子反射が見られる．$q_x = 0, q_z < 1.84$ には基板 MgO(002) 反射の裾がある．この測定結果ではバッファIr(002) 反射も超格子反射も多少 Q_x 方向の広がりはあるもののスポットであることから，膜面垂直方向のみに配向した texture ではなく [14] 単結晶的人工格子であることが分かる．

$(q_x, 0, q_z)$scan により単結晶か texture かの違いは明らかになるが，面内の格子間隔などの情報は得られない．そこでつぎに逆格子空間で (010)* 面内の他の反射を測定した．ちょうど [010]* に垂直な面内の反射を 3 箇所測定した．実際に測定を行ったのは Ir(111),(113),(311) 反射近傍の $q_x - q_z$scan であり，それぞれの反射の位置関係を図 3.15 に示し，各領域での拡大図を図 3.16 ，図 3.17，図 3.18 に示す．図 3.15 で見られる反射はすべて逆格子空間の原点を中心とする円弧に拡がっていることが分かる．また (113) や (311) など原点から離れた反射の方が (111) に比べ，動径方向に拡がっていることが分かる．

図 3.17 の (113) 近傍の $q_x - q_z$map では q_x 方向の拡がりが大きく，Ir(113) 反射と超格子 (SL) 反射の q_x 方向でのずれは見られないが，図 3.16 や図 3.18 を見ると，(111) 近傍或いは (311) 近傍では，Ir(311) 反射と SL$(311)_{\pm n}$，あるいは Ir(111) 反射と SL$(111)_{\pm n}$ の q_x 方向でのずれが見られる．このずれの大きさは Ir に比べて約 1%ほど大きくなっている．超格子反射の q_x 方向の大きさは Co と Ir とで構成される人工格子 1 周期分の面内の平均面間隔に相当することから，超格子の面内の平均構造は，実空間で考えるとバッファIr 面内の格子定数に比べて 1%程小さいことが分かる．したがって，(311)，(111) 反射で見られた超格子反射のバッファIr 層からの q_x 方向のずれは Co の面内での格子定数が Ir に比べて小さいことを意味しており，Co 層の結晶構造としては，bcc 構造が面内で縮むことにより Ir と整合性

を保つという描像よりも，fcc 構造が面内で拡がるという描像の方が妥当であることを指示している．さらに定量的な測定を行うことにより成長方向および膜面内での Co 層，Ir 層の平均面間隔を導くことも可能であると考えられる．Wu らは Co/Au(001) 超格子に関して同様の測定を行っており，Ir より格子定数の大きな Au と Co とを組み合わせた場合には Co は bcc 構造になることを示している [15]．人工格子を構成するスペーサ層の物質により Co 層の準安定相がどのように変化するのか興味ある問題である．人工格子の作製方法と構造解析に関する研究は，物性を考える上で基本となるものであるにもかかわらず，他の物性に関する報告に比べてまだまだ少なく今後の発展が期待される．

3.3.2 磁気的性質

本節では作製した Co/Ir(001) 人工格子の磁性について述べる．図 3.19 に RT における磁化曲線を示す．測定は $H = 50\text{kOe}$ 磁場を印加した後，$H = -50\text{kOe}$ まで磁場を変化させ，その後再び印加磁場を大きくして $H = 50\text{kOe}$ まで測定して 1 ループとした．なお $5 \leq t_{Ir} \leq 10$ Å の試料はどれも 50kOe の印加磁場では飽和しなかったため，図 3.19 には示していない．図 3.19 の左に示してある磁化曲線は強磁性的な層間結合が存在しているか，或いは層間結合の存在していないと考えられる試料のものである．一方右の列に示したものは反強磁性的な層間結合が存在していると考えられる試料の磁化曲線である．左側に並べた磁化曲線は飽和磁場 H_s が低く残留磁化 M_R が大きい．逆に右側のものは H_s は大きく M_R は小さな値であることから，それぞれ強磁性結合と反強磁性結合であると判断した．反強磁性結合している試料の中でも $t_{Ir} \leq 10$ Å の試料と，$t_{Ir} \approx 16$ Å 付近の試料は非常に反強磁性結合を特徴づける磁化曲線を示す．すなわち零磁場で隣り合う強磁性層が反平行の磁化配列をとることにより，全体としての磁化はほとんど 0 になる．また磁場を印加したときに生じる磁化は磁場に対して直線的に増加し，ある程度の磁場で完全に飽和する．$t_{Ir} \leq 10$ Å の試料の磁化曲線はその帯磁率が基板 MgO の反磁性の寄与と同程度であり，測定が困難であるため磁化曲線全体の形状に関する議論は出来ないが，$t_{Ir} \approx 16$ 付近の試料ではこの傾向が強い．これまでに報告されている反強磁性結合した様々な系の磁化曲線 [16] と比べても，この Co/Ir 人工格子は理想的な磁化曲線の形状を示している．また $t_{Ir} \approx 30$ Å 付近の試料では強磁性結合の試料に比べて多少 M_R が小さく，H_s が大きいように見える程度であった．この領域では

反強磁性的結合は弱いため，はっきりと見えないのではないかと思われる．

$t_{Ir} \approx 16$ Å 付近の試料の磁化曲線において，零磁場近傍の磁化過程に注目する．図 3.19 で $t_{Ir} = 16$ Å の試料では $H \approx 2$kOe までは磁化率は小さくその後磁化率が大きくなるような傾向が見られる．そこで異方性の存在するような反強磁性物質に見られる spin-flop がその原因ではないかとまず考えた．実際に一軸異方性の存在する Fe/Cr(211) 人工格子において，その積層周期に依存して spin-flop が生じる事が見いだされている [7]．この Co/Ir(001) 人工格子において Co は fcc 構造をとり，面内には 4 回の対称性が存在している．したがって面内に印加する磁場を $H//[100]$ と $H//[110]$ と 2 通りの磁化曲線を測定してみれば，それぞれの方向での磁化曲線を比較することにより spin-flop であるか否かが分かるはずである．実際に測定した結果を図 3.20 に示す．試料は $t_{Ir} = 17$ Å を測定した．$H//[100]$ では spin-flop 的な磁化の飛びがあって，一方の $H//[110]$ の場合は単調に磁化が磁場と共に増加しているというように，磁化過程に若干の差もあるように見えるが，spin-flop の有無に関してはもう少し精度の高い測定が必要である．もし精度良い測定で印加磁場の方向に因るような有意な差が見られなかったときは，この磁化曲線に見られる $H \approx 2$kOe の変曲点は結晶異方性などに起因したすると考えるよりも，むしろ磁化過程によるものと考える方が妥当である．たとえば低磁場に於ける磁化過程は磁壁移動が支配的で，磁場が大きくなるに連れて一斉回転或いは fanning によるものが支配的であるといったようなものであるのかもしれない．尚，いくつかの試料に関しては成長方向に磁場を印加して測定を行ったが，Broeder らが報告したような垂直磁気異方性 [17] は見られず，どの試料も面内磁化であった．

つぎに図 3.21 に磁気抵抗の常温での測定結果を示す．印加磁場は 90kOe までであり，磁化測定で飽和させることの出来なかった試料も Ir 層厚の一番薄い $t_{Ir} = 5$ Å を除いてすべて飽和した．磁化曲線で反強磁性的に結合しているように見える $t_{Ir} \leq 10$ Å と $t_{Ir} \approx 16$ Å 付近の試料の磁気抵抗 MR $= \Delta R/R(H > H_s)$ は，おおよそ 1.1%であった．図 3.21 をみると MR を用いると飽和磁場 H_s は MH から決めるよりも簡単に見積もることが可能になる．$t_{Ir} = 5$ Å の試料では $H = 90$kOe でも飽和せず，その反強磁性結合がとても強いことが分かる．また面内に印加する電流を磁場に対して平行にした場合も垂直にした場合も同様に負の磁気抵抗を示し，またその磁気抵抗曲線はほとんど差は見られなかったことから，AMR ではなく GMR 効果が観測されたものと解釈される．

一方強磁性結合している試料ではその MR は小さくどの試料も 0.1%程度であった．いず

れの測定もバッファ層であるIr600 Åを含んだものであり，電流は人工格子部分ではなくバッファ層を流れる”シャント”効果を考慮すればもっと大きな値となる．低温(10K)に於ける測定も行ったが，シャントの寄与が大きくなり負の磁気抵抗は現れなかった．

Coマトリックス中にIrを不純物として添加した場合の残留抵抗の解析からスピン依存散乱の非対称パラメータ($\alpha = \rho_{0\downarrow}/\rho_{0\uparrow}$)は，0.33である[18]．この値はFe/Crのような典型的なGMR系の値($\alpha > 15$)[19]に比べると小さな値でありGMR効果はあまり大きくないことが予想される．しかしながら第2章でのべたCo/Ir(110)人工格子では室温においてMR≈ 0.3%であった例を出すまでもなく，MR比はその作製方法や作製条件に強く依存する事が知られており，他の系との定量的な比較は困難であることからこれ以上の議論はしない．

MH曲線，MR曲線から得られたH_sやM_Rをt_{Ir}に対してプロットしたものが，図3.22である．残留磁化M_Rはその飽和磁化M_Sで規格化してある．t_{Ir}に強く依存してM_R/M_SやH_Sが振動している様子が分かる．特にt_{Ir}の薄い領域での飽和磁場は測定できなかったため1stAF（反強磁性）結合ピークは不明であるが，H_sの振動の様子から見て振動周期Λは10 Å，あるいは13 Åであると見積もられる．Parkinの報告[20]では$\Lambda = 9$ Åであるが，これはIrの結晶配向の違いやCo層厚の違いによる歪みなどに起因した差ではないかと考える．Ir層厚が薄くなればどこかで隣り合うCo層同士が直接交換結合が働き強磁性的になると考えられるが，Ir層厚が5 Åというのは原子層にして2～3層程度であり，それだけの厚さしかないのに関わらず非常に強く反強磁性結合を示しているという事は試料の品質の高さを示していると共に，そのメカニズムに関しても興味深い．

貴金属（Au,Ag,Cu）を非磁性層として用いたような人工格子の場合には，そのFermi面の形状が単純であることから振動周期Λの理論と実験の良い一致が見られている[21]．しかしその他の遷移金属に関しては非常に複雑なFermi面を持っている[22]ためΛの定量的な比較は難しい．Stilesが様々の遷移金属のスペーサに関してLAPW法を用いてそのFermi面の形状を計算しspannig vectorを求めることによって予想されるΛと，実験で求められたΛとを多くの人工格子系に関して比較している[23]．しかしながら実際の人工格子は実験的にも評価するのに困難な界面でのmixingや歪み等の振動周期に影響を及ぼす複雑な要素が存在し単純に比較することは無意味である．いずれにしても実験的にはCo/Ir(001)におけるΛは確定してはおらず，t_{Ir}の薄い領域と厚い領域に関する測定を行う必要がある．

つぎに層間結合の大きさJに関して議論する．Jは積層周期が十分に大きい場合$J =$

$H_S M_S t_{Co}/4$ で表される [24] ことが知られており，$t_{Ir} = 5$ Å では $J > 2.2\mathrm{erg/cm^2}$ である．この大きさは Parkin がスパッタ法を用いて作製した Co/Ir 多層膜の値 ($1.85\mathrm{erg/cm^2} t_{Ir} = 4$ Å)[20] に比べて大きな値である．一般に磁性層/非磁性層界面でのラフネスは層間結合を弱くすることから，作製した Co/Ir 人工格子はスパッタ法で作製した試料と比べて平坦な構造を持っていることが基本的な理由でないかと考えられる．

この層間結合の大きさが t_{Ir} との関係に注目するとおおよそ $J_{AF} \propto t_{Ir}{}^{-2.1}$ の関係で減少していくことが分かった．これは単純な RKKY モデルに基づく予想と非常によい一致を示している．

3.4 まとめ

以上の結果から MBE 法により作製した Co/Ir 人工格子に関して以下のような知見を得ることが出来た．その構造，および磁気的性質に関してそれぞれまとめた．

3.4.1 Co/Ir(001) 人工格子の構造

様々な基板，バッファ層を試み，成長条件を吟味した結果，基板には単結晶 MgO(001) 基板（フルウチ化学）を使用しバッファ層は Fe12 Å　Pt50 Å　Ir600 Å を基板温度 600°C で成長させることが適当であることが分かった．また人工格子の成長温度は 60°C であった．

このように成膜条件の最適化を行った結果，はじめて Co/Ir(001) 人工格子の MBE による作製に成功した．

RHEED 測定から Co/Ir は基板 MgO の面方位を保って成長していることが確認された．またその成長モードは Co 層が薄いときには 2 次元的な層状成長（Frank-van der Merwe 型）で非常に平坦な表面になることが分かった．

2 軸 XRD 測定の結果から Co は成長方向に縮んだ fcc 構造になっていることがわかった．人工格子の高いコヒーレンスを示すシャープな超格子反射が高次まで観測され，非常に周期性が良く界面での拡散の少ない人工格子が作製されていることを確認した．

4 軸 XRD 測定により Co，Ir 層共に 3 次元的に配向して成長していることが確認された．人工格子の面内の平均面間隔はバッファ Ir 層に比べて約 1% 程小さく，これは Co 層が歪んだ fcc 構造であることを指示している．人工格子の結晶配向は以下のようになっている事が

分かった.

fcc-Co[010](001)//fcc-Ir[010](001)//fcc-MgO[010](001)

3.4.2 Co/Ir(001) 人工格子の磁気的性質

作製した Co/Ir(001) 人工格子には強い反強磁性結合が生じていることを確認した. 磁化曲線は, 磁化率が一定であり "きれいな" 反強磁性型であった.

層間結合の大きさは $t_{Ir} = 5$ Å では $J > 2.2\mathrm{erg/cm^2}$ であり従来報告されていたスパッタ法による試料に比べて ($1.85\mathrm{erg/cm^2}$) 大きな値であった.

層間結合の振動周期は 10 ないし 13 Å であり, スパッタ法による試料で報告された値とは異なった.

層間結合の大きさはおおよそ $J_{AF} \propto {t_{Ir}}^{-2.1}$ の関係で減少していくことが分かった. これは単純な RKKY モデルに基づいた描像と非常によい一致を示している.

参考文献

[1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Deu, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**,2472(1988). ; S. S. P. Parkin, A. Mansour, G. P. Felcher, Appl. Phys. Lett. **58**,1473(1991).

[2] S. S. P. Parkin, B. Bhadra, and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. **66**(1991).

[3] S. Andrieu, F. Lahatra Razafindramisa, E. Snoeck, H. Renevier, A. Barbara, J. M. Tonnerre, and M. Brunel, Phys. Rev. **B 52**, 9938(1995).

[4] 金原 粲，藤原英夫，薄膜，裳華房，31 (1979).

[5] S. S. P. Parkin, R. F. Marks, R. F. C. Farrow, G. R. Harp, Q. H. Lam, and R. J. Savoy, Phys. Rev. **B46**, 9296(1992).

[6] R. F. C. Farrow, G. R. Harp, R. F. Marks, T. A. Rabedeau, M. F. Toney, D. Weller and S. S. P. Parkin, J. Crystal Growth **133**, 47 (1993).

[7] Eric E. Fullerton, M. J. Conover, J. E. Mattson, C. H. Sowers, and S. D. Bader, Phys. Rev. **B48**, 15755(1993).

[8] J. E. Cunningham, J. Dura, and C. P. Flynn, Metallic Multilayers and Epitaxy, ed. M. Hong, S. Wolf, and D. C. Gubser, The Metallurgical Society, Inc. 77(1988).

[9] N. Nakayama, T. Okuyama, and T. Shinjo, J. Phys. Condens. Matter **5**, 1173 (1993).

[10] N. Nakayama, L. Wu, H. Dohnomae, T. Shinjo, J. Kim, and C. M. Falco, J. Magn. Magn. Mater. **126**,71(1993).

[11] 菅野，浜田，表面の微視的構造，物理学最前線 6，大槻義彦編，共立出版 (1994).

[12] G. A. Prinz, Phys. Rev. Lett. **54**,1051(1985).

[13] Y. U. Idzerda, W. T. Elam, B. T. Jonker, and G. A. Prinz, Phys. Rev. Lett. **62**,2480(1989).

[14] N. Nakayama, L. Wu, H. Dohnomae, T. Shinjo, J. Kim, and C. M. Falco, J. Magn. Magn. Mater. **126**, 71(1993).

[15] Lianjun Wu, Kazuhiko Shintaku, Teruya Shinjo, and Noriaki Nakayama, J. Phys. :Condens. Matter **5**, 6515(1993).

[16] S. S. P. Parkin Phys. Rev. Lett. **67**, 3598 (1991).

[17] F. J. A. den Broeder, W. Hoving, and P. J. H. Bloemen, J. Magn. Magn. Mater. **93**, 562 (1994).

[18] I. A. Campbell and A. Fert, Ferromagnetic Materials Vol. 3, ed. E. P. Wohlfarth and K. H. J. Bushow, North-Holland(1984).

[19] J. Inoue and S. Maekawa, Prog. Theor. Phys. Suppl, **106**, 187 (1991).

[20] S. S. P. Parkin Phys. Rev. Lett. **67**, 3598 (1991).

[21] A. Fuß, S. Demokritov, P. Grünberg, nad W. Zinn, J. Magn. Magn. Mater. **103**, L221 (1992); V. Grolier, D. Renard, B. Bartenlian, P. Beauvillain, C. Chappert, C. Dupas, J. Ferré, M. Galtier, E. Kolb, M. Mulloy, J. P. Renard, and P. Veillet, Phys. Rev. Lett. **71**, 3023 (1993); S. S. P. Parkin, R. F. Farrow, R. F. Marks, A. Cebollada, G. R. Harp, and R. J. Savoy, Phys. Rev. Lett. **72**, 3718 (1994); J. Unguris, R. J. Celotta, and D. T. Pierce, Phys. Rev. Lett. **79**, 2734 (1997).

[22] O. Krogh Andersen Phys. Rev. **B 2**,883(1970).

[23] M. D,Stiles, Phys. Rev. **B 48**,7238(1993).

[24] F. Nguyen Van Dau, A. Fert, P. Etienne, M. N. Baibich, J. M. Broto, G. Creuzet, A. Friederich, S. Hadjoudj, H. Hurdequint, and J. Massies, J. Phys. (Paris) Col-

loq. ,**49**,1633(1988). S. S. P. Parkin, A. Mansour, G. P. Felcher, Appl. Phys. Lett. **58**,1473(1991).

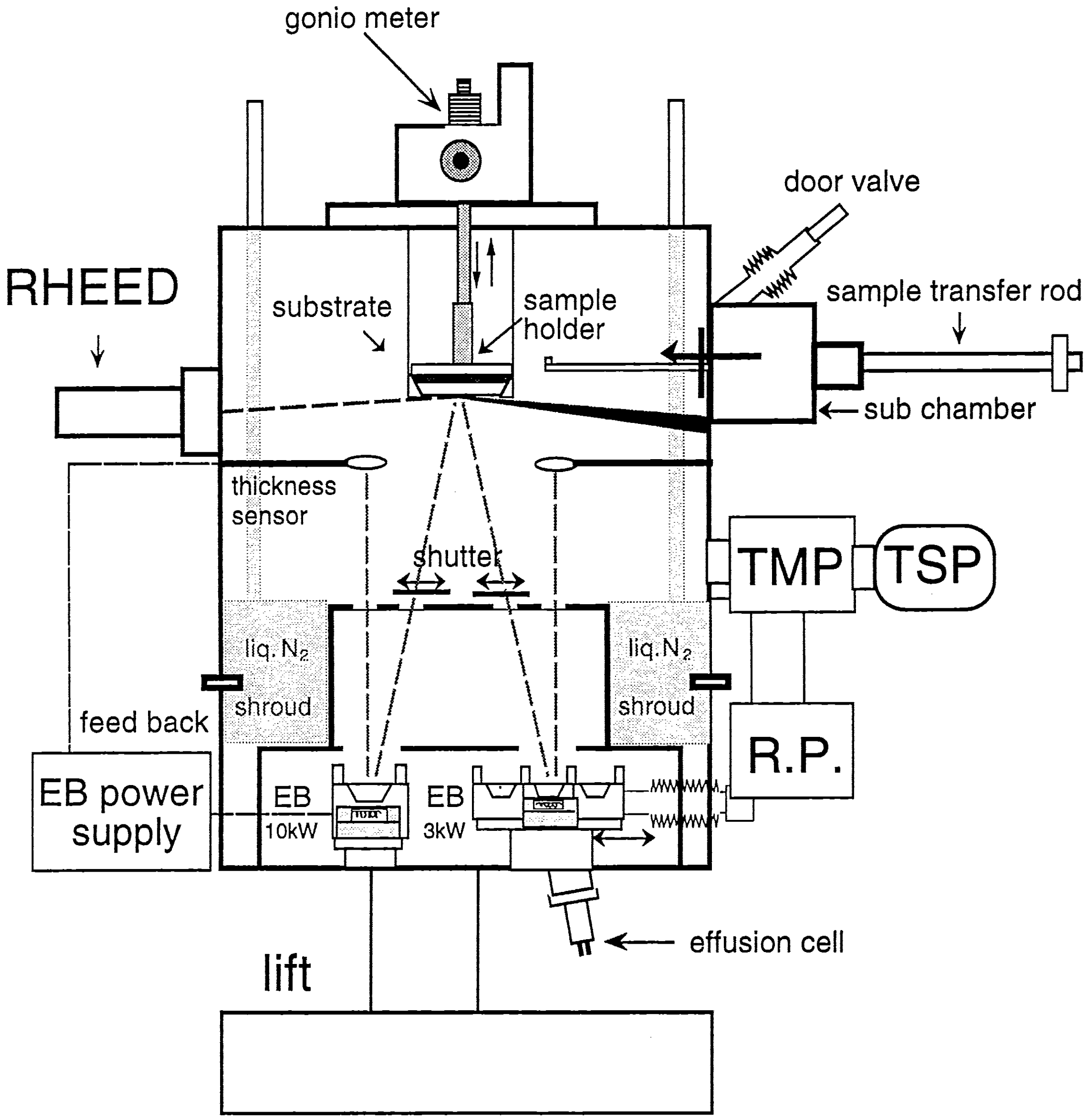


図 3.1: 超高真空蒸着装置（日本シード研究所社製;SEO-5）概念図

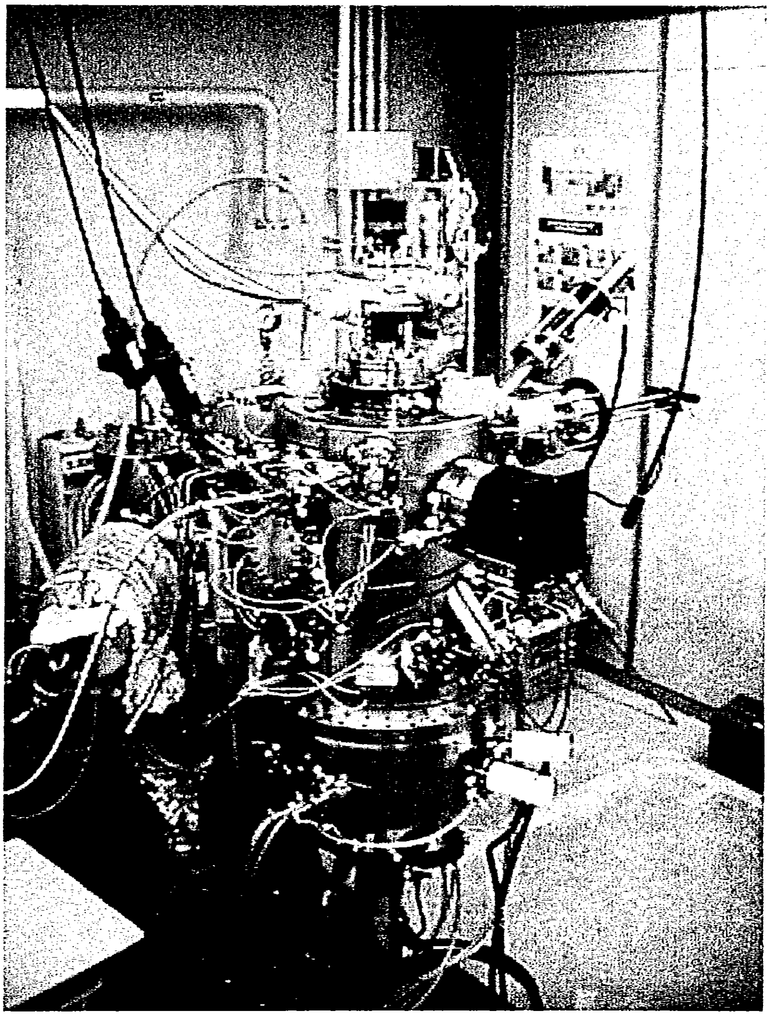


図 3.2: 超高真空蒸着装置（日本シード研究所社製;SEO-5）写真

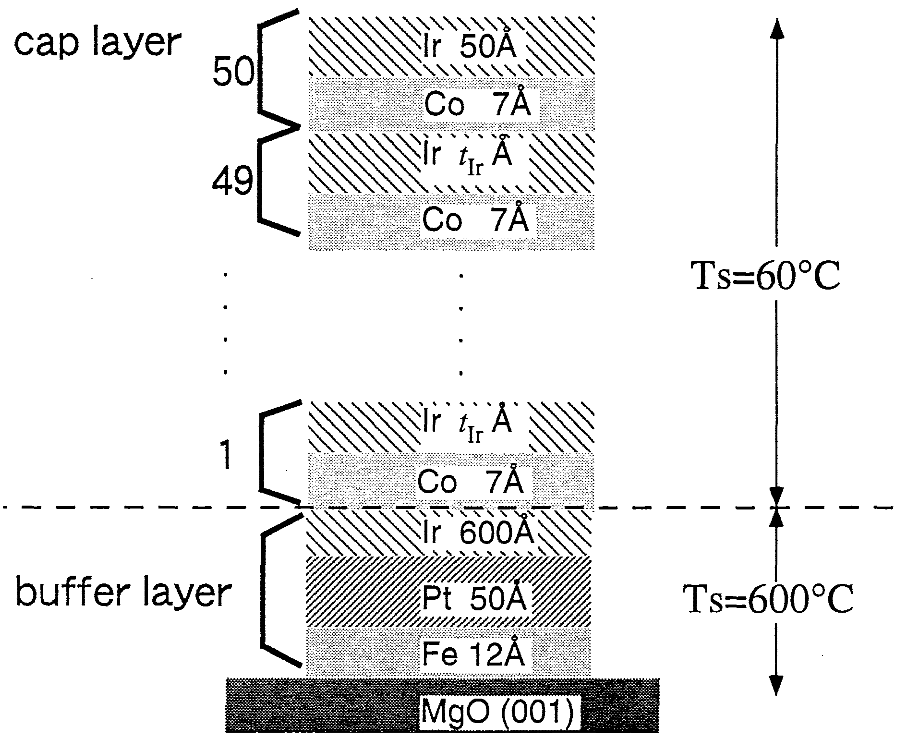


図 3.3: Co/Ir(001) 人工格子の模式図.5 Å$\leq t_{\mathrm{Ir}} \leq$ 34 Å: t_{Co}=7 Å, N=50.

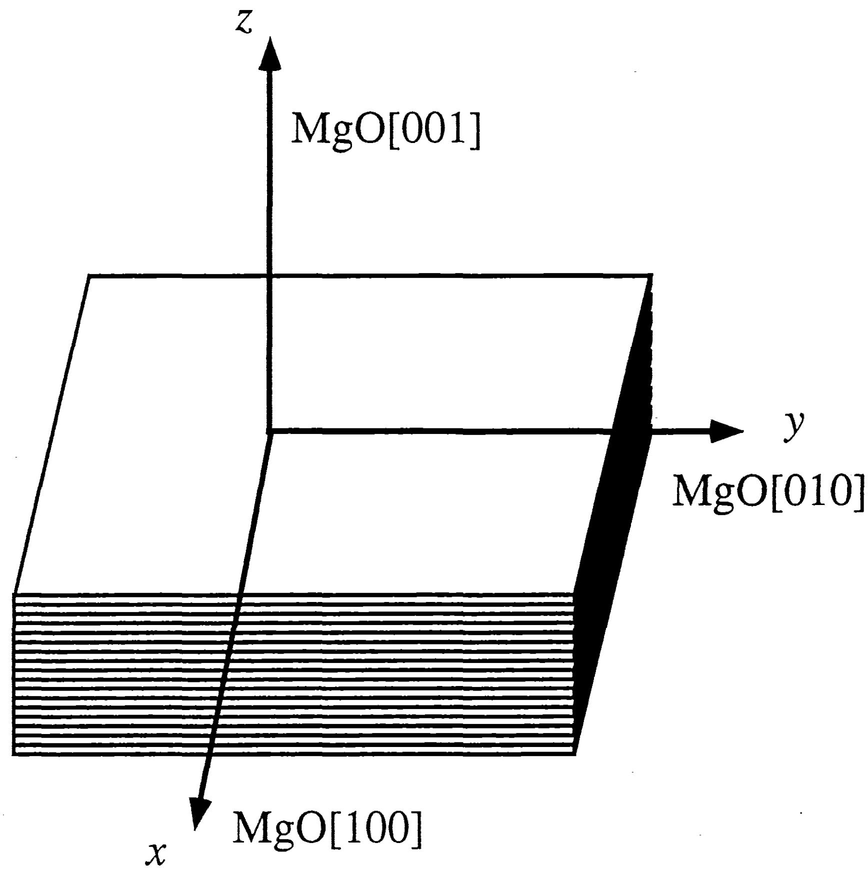


図 3.4: Co/Ir(001) 人工格子の模式図.5 Å$\geq t_{\mathrm{Ir}} \geq$ 34 Å: t_{Co}=7 Å, N=50.

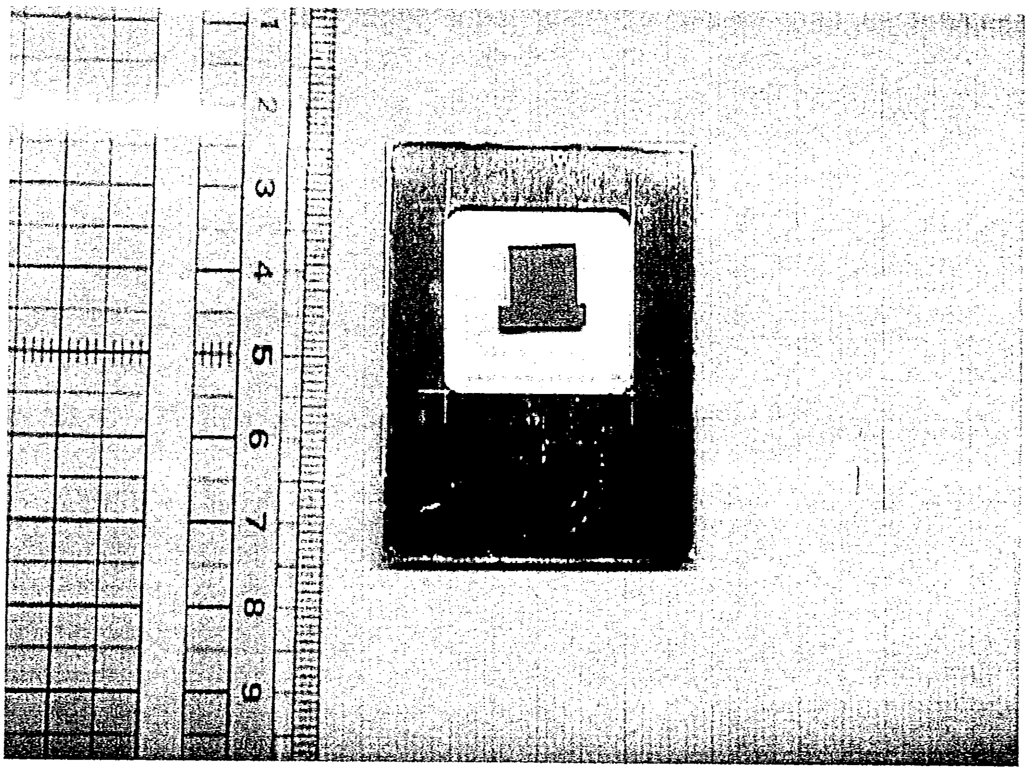


図 3.5: 二軸 XRD 用サンプルホルダーの写真. 試料をセットする部分は 5mm の深さで刳ってあり, このためホルダーからの反射がカウンターに入らないようになっている.

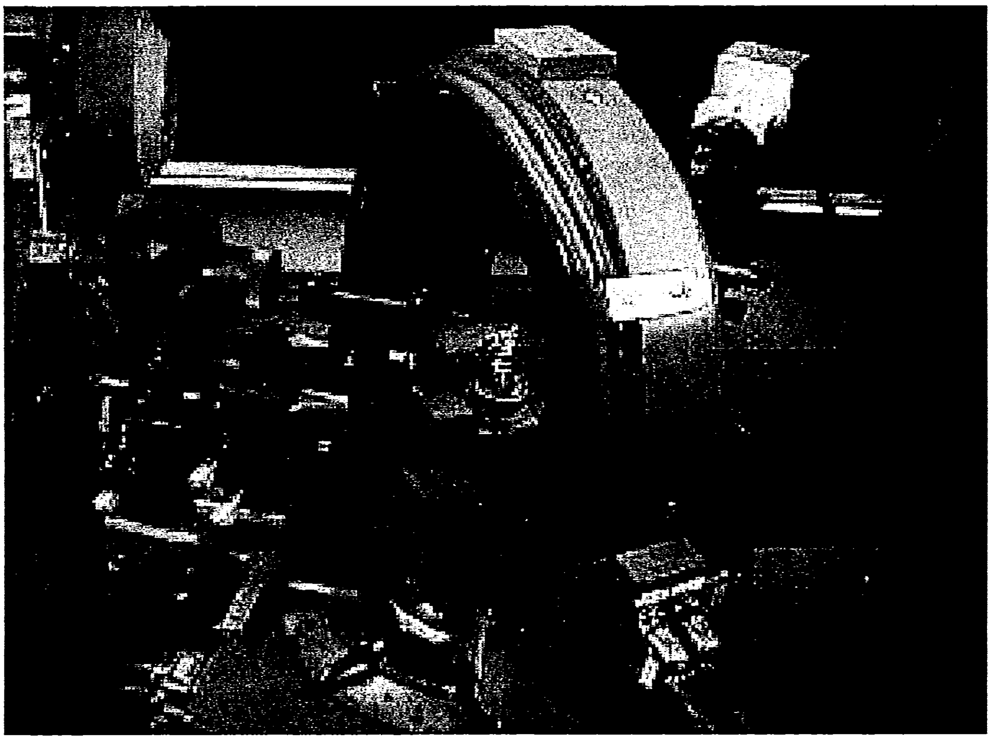


図 3.6: 筑波大学物理工学系大嶋研究室に設置されている四軸X線回折計:MODOKI の写真.

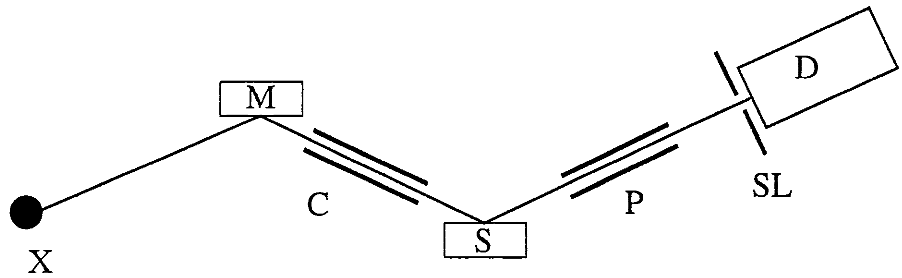


図 3.7: 4 軸回折計；MODOKI の光学系 X:X 線源，M:HOPG モノクロメータ，C:コリメータ，S:試料，P:ビームパス，SL:スリット，D:SSD

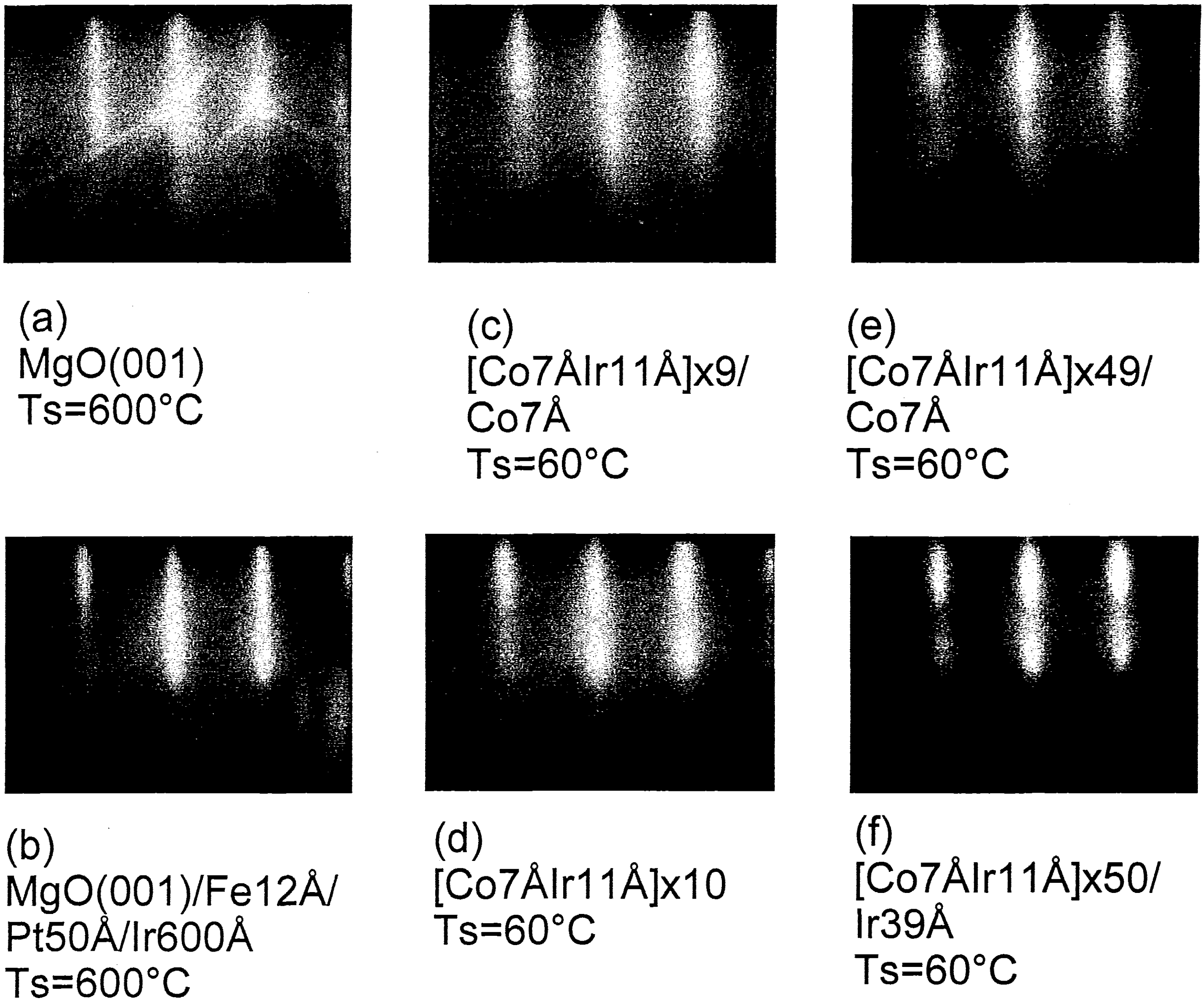


図 3.8: 成長中の RHEED 写真. MgO$< 100 >$方向から入射.

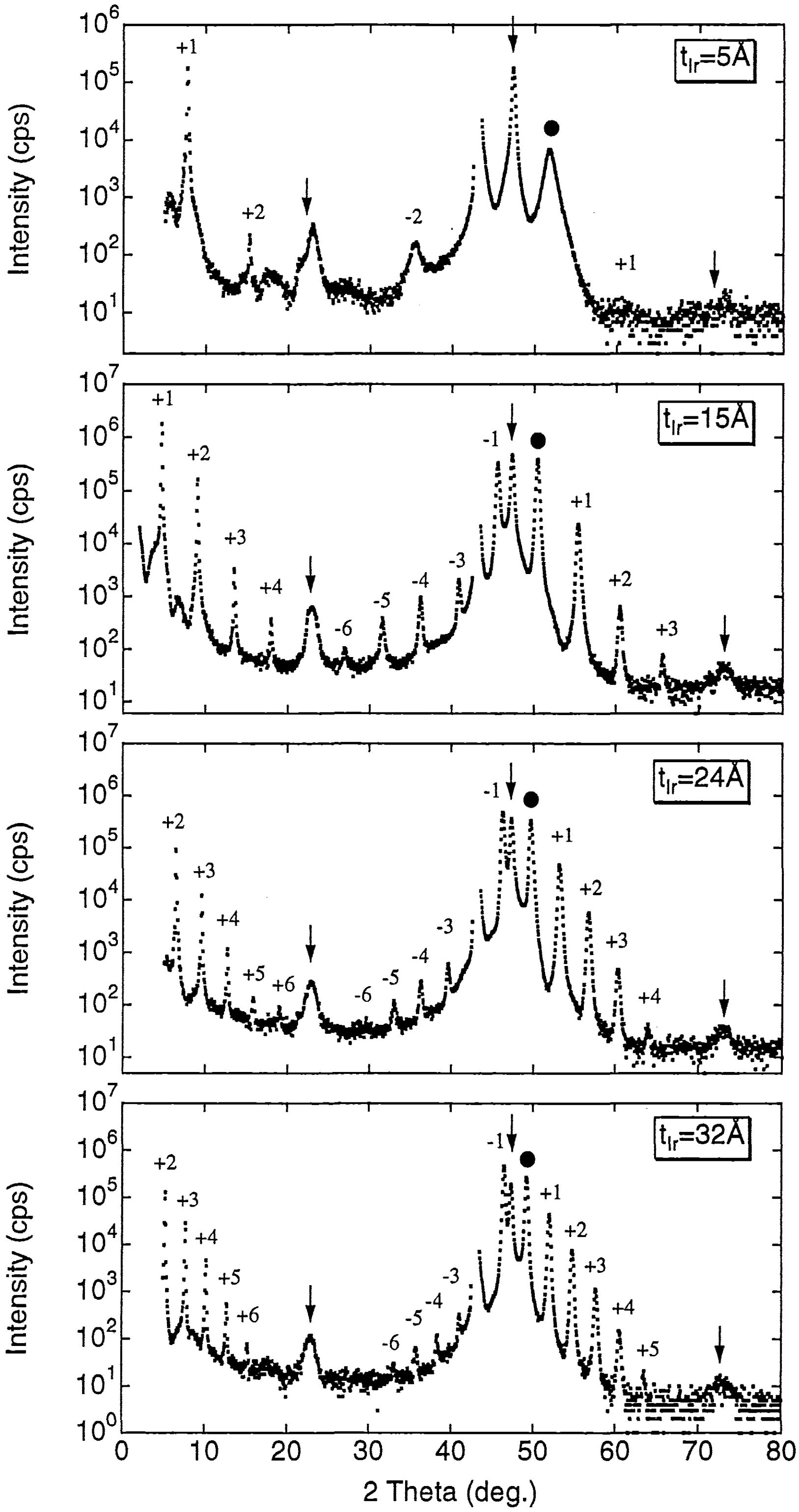


図 3.9: 二軸 X 線回折の結果．X 線源は Cu $K\alpha$ である．縦軸は対数．

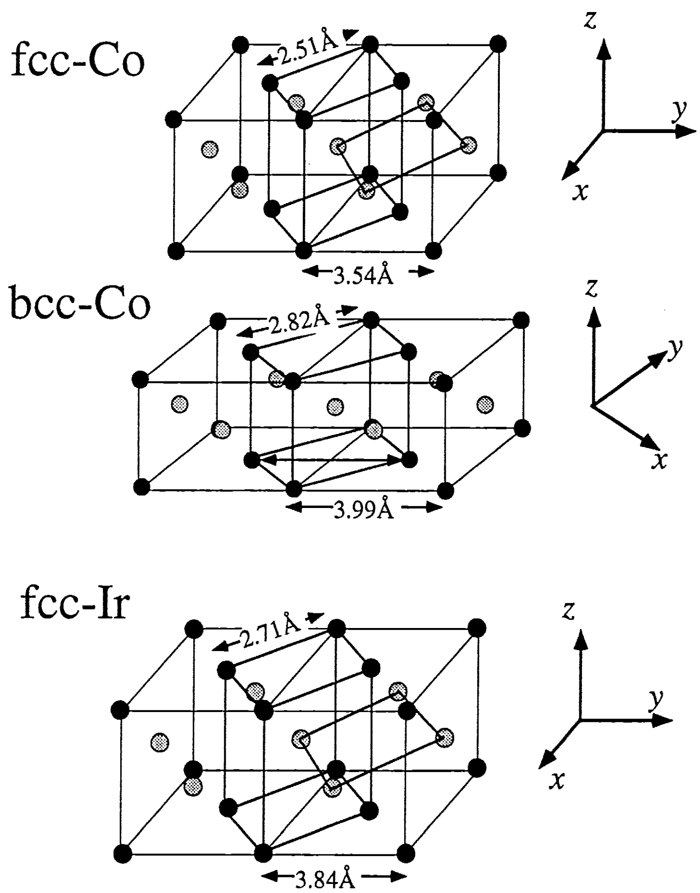


図 3.10: fcc-Co,bcc-Co,fcc-Ir の結晶構造．bcc-Co は x-y 軸が 45° 回転させて描いてある．

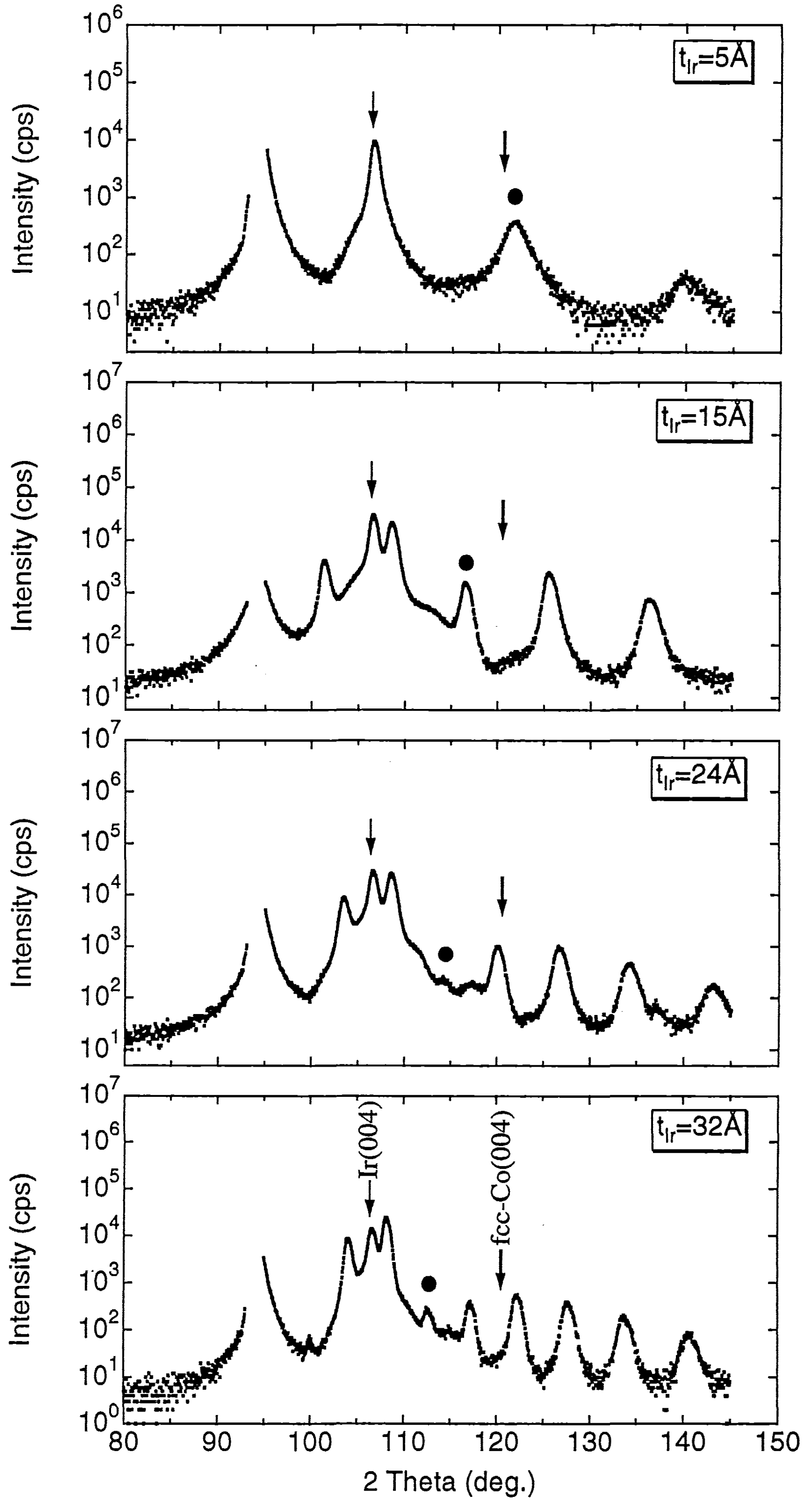


図 3.11: Ir(004) 近傍の二軸 X 線回折プロファイル．X 線源は Cu $K\alpha$ である．縦軸は対数．矢印はそれぞれ bulk fcc-Ir(004) 及び bulk fcc-Co(004) のピーク位置を示す．

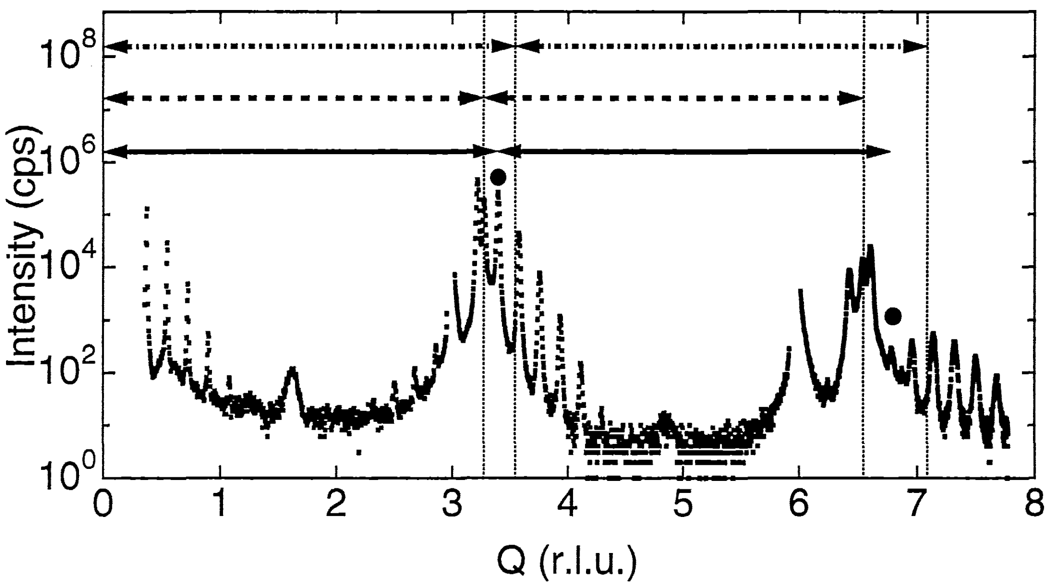


図 3.12: $t_{Ir} = 32\AA$ の XRD プロファイル（Q プロット）．破線と一点破線の長さはそれぞれ $Q_{Ir}^{002} = 2\pi/d_{Ir}^{002} = 3.27\AA^{-1}$，$Q_{Co}^{002} = 2\pi/d_{Co}^{002} = 3.55\AA^{-1}$ を意味する．黒丸は基本反射である．

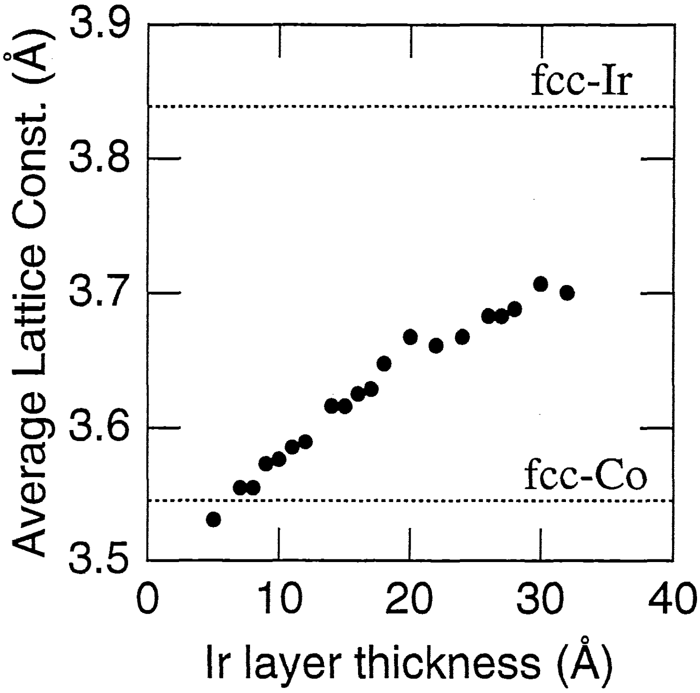


図 3.13: 平均面間隔 ($\bar{a}$) と Ir 層厚 (t_{Ir}) の関係.

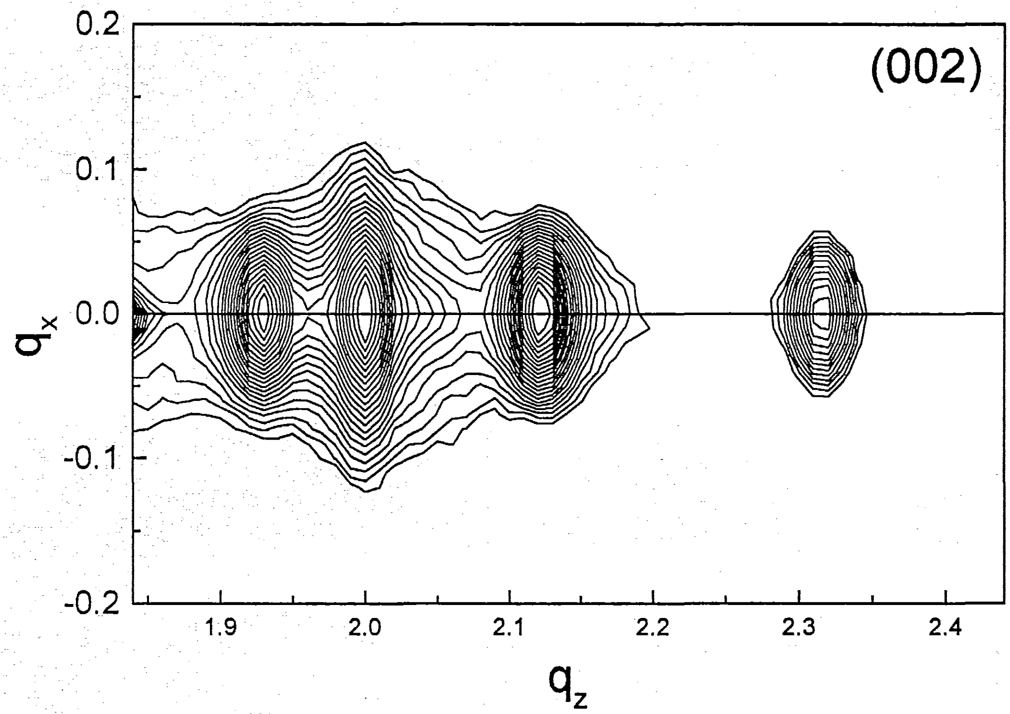


図 3.14: Ir(002) 反射周りの $q_x - q_z$scan.

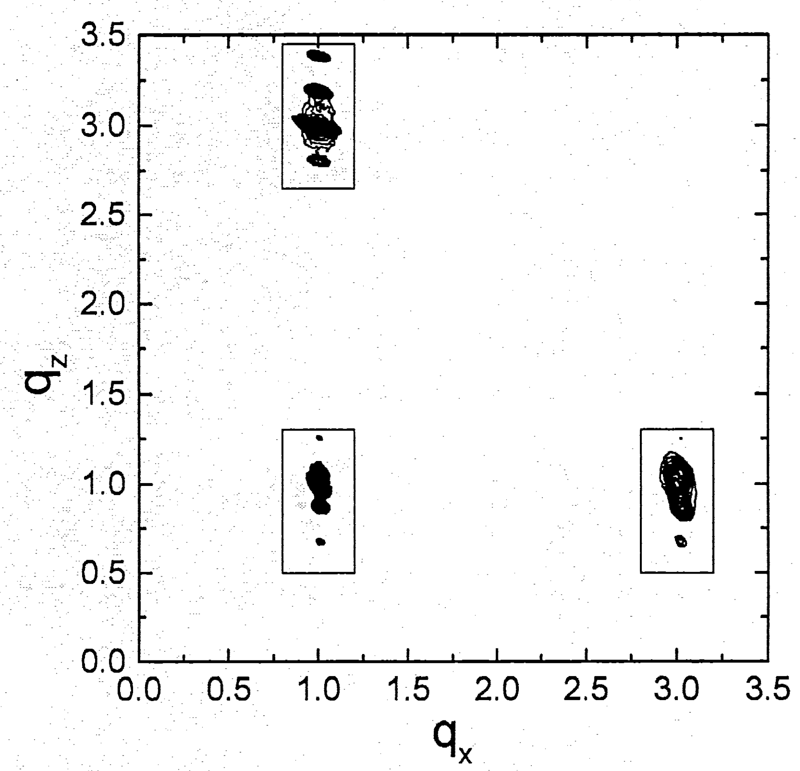


図 3.15: (010)* 面内で mapping を行った領域. Ir(111),(113),(311) 反射まわりの $q_x - q_z$scan の位置関係を示す.

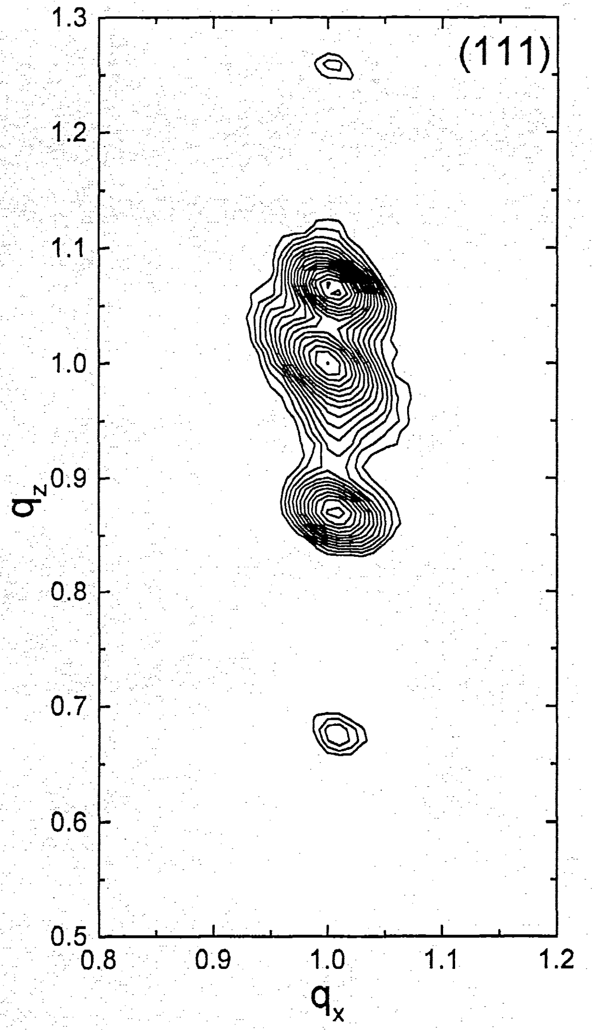


図 3.16: Ir(111) 反射周りの $q_x - q_z$scan．等高線は log スケール．

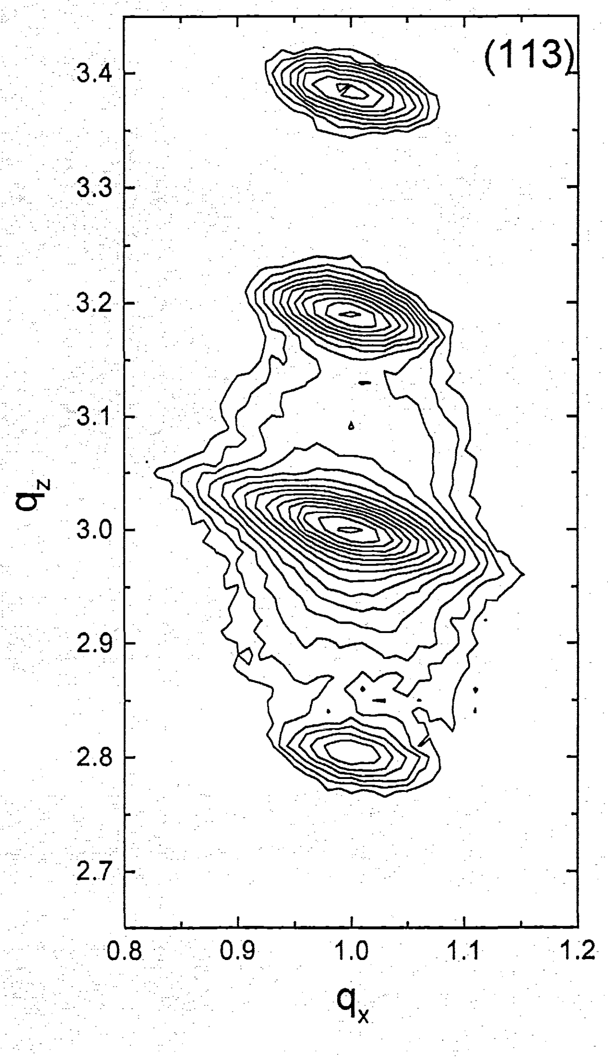


図 3.17: Ir(113) 反射周りの $q_x - q_z$scan. 等高線は log スケール.

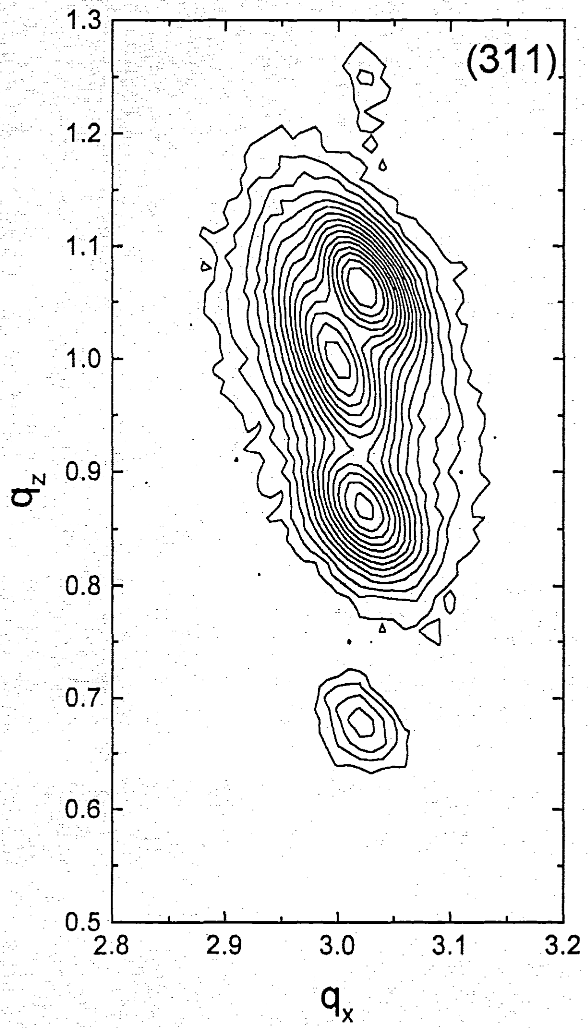
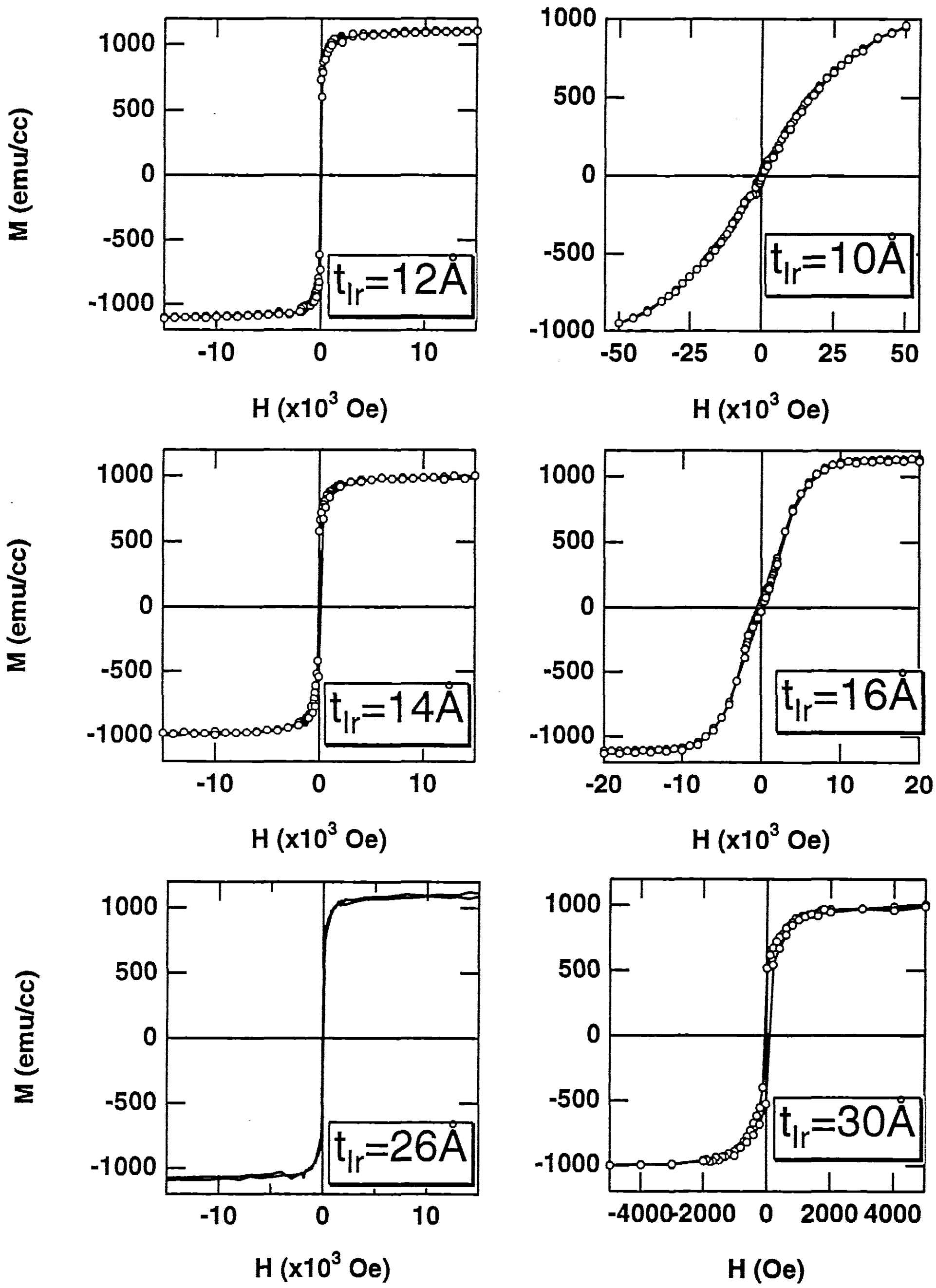


図 3.18: Ir(311) 反射周りの $q_x - q_z$scan. 等高線は log スケール.



M (emu/cc)
1000
500
0
-500
-1000
-10
0
10
H (x10^3 Oe)
t_Ir=12Å
-50
-25
25
50
t_Ir=10Å
t_Ir=14Å
-20
20
t_Ir=16Å
t_Ir=26Å
-4000
-2000
2000
4000
H (Oe)
t_Ir=30Å

図 3.19:

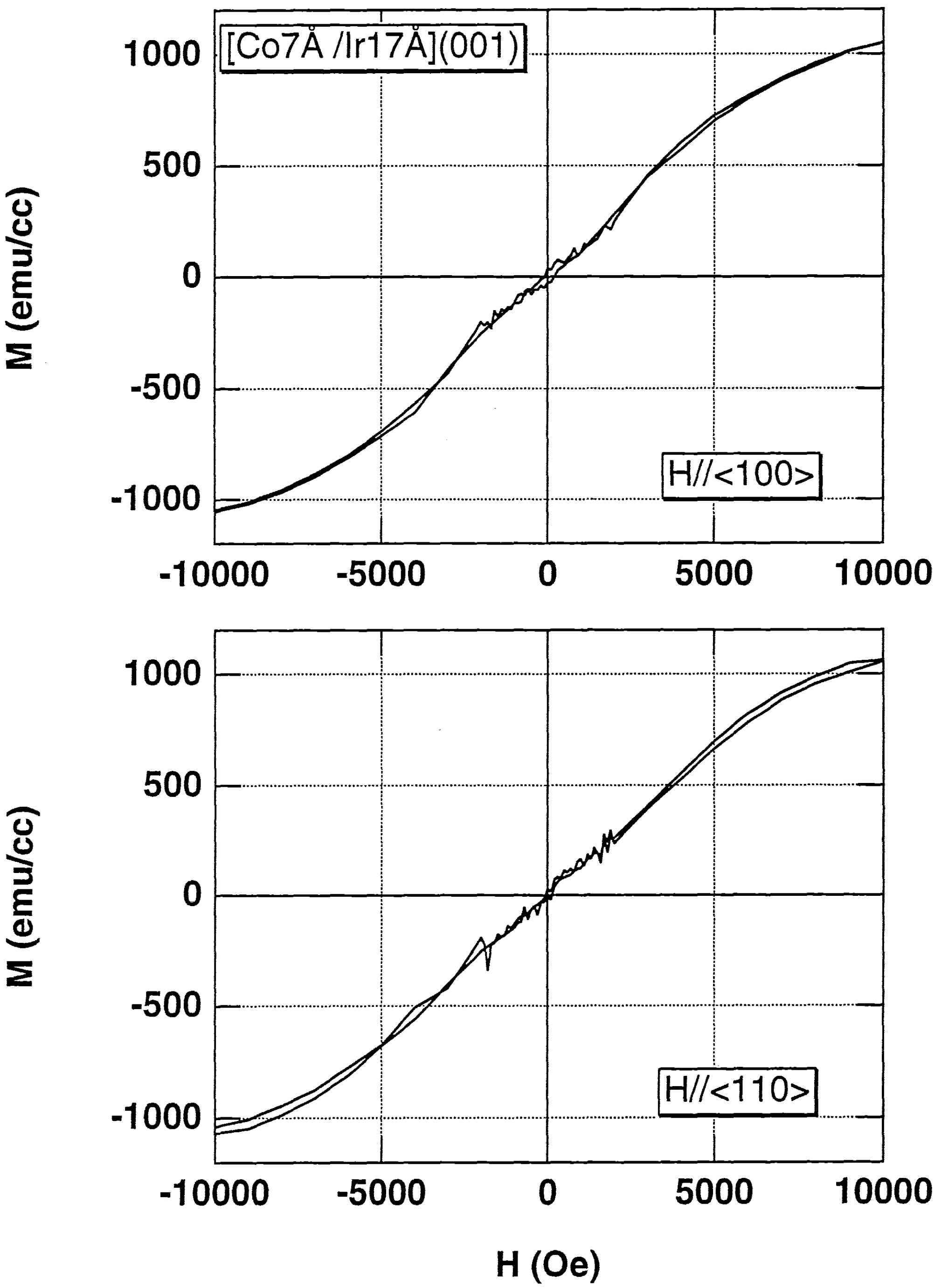


図 3.20: [Co 7 Å/Ir 17 Å]$_{\times 50}$ (001) の印加磁場方向の違いによる磁化過程.

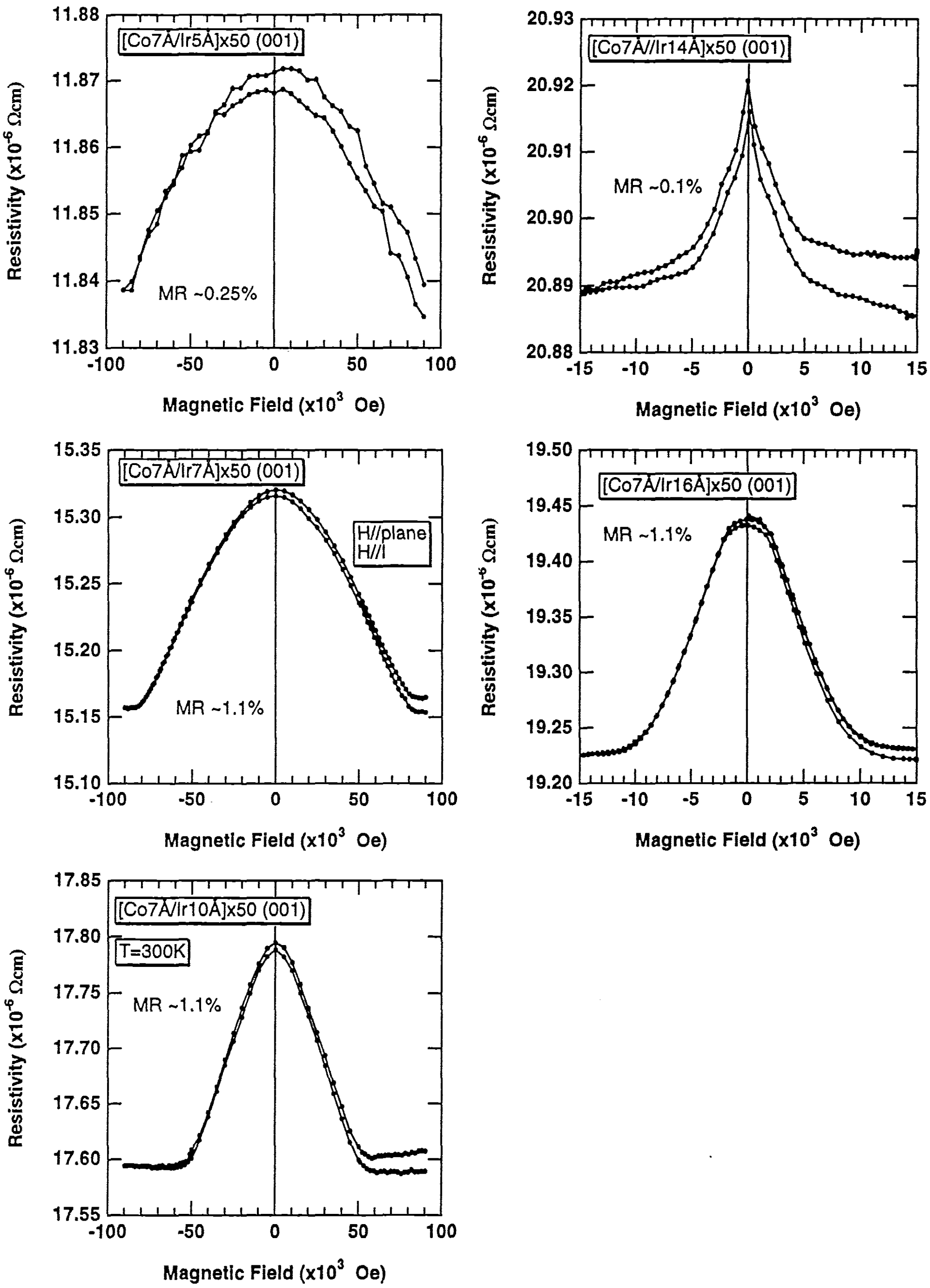


図 3.21: Co/Ir(001) 人工格子の室温における磁気抵抗.

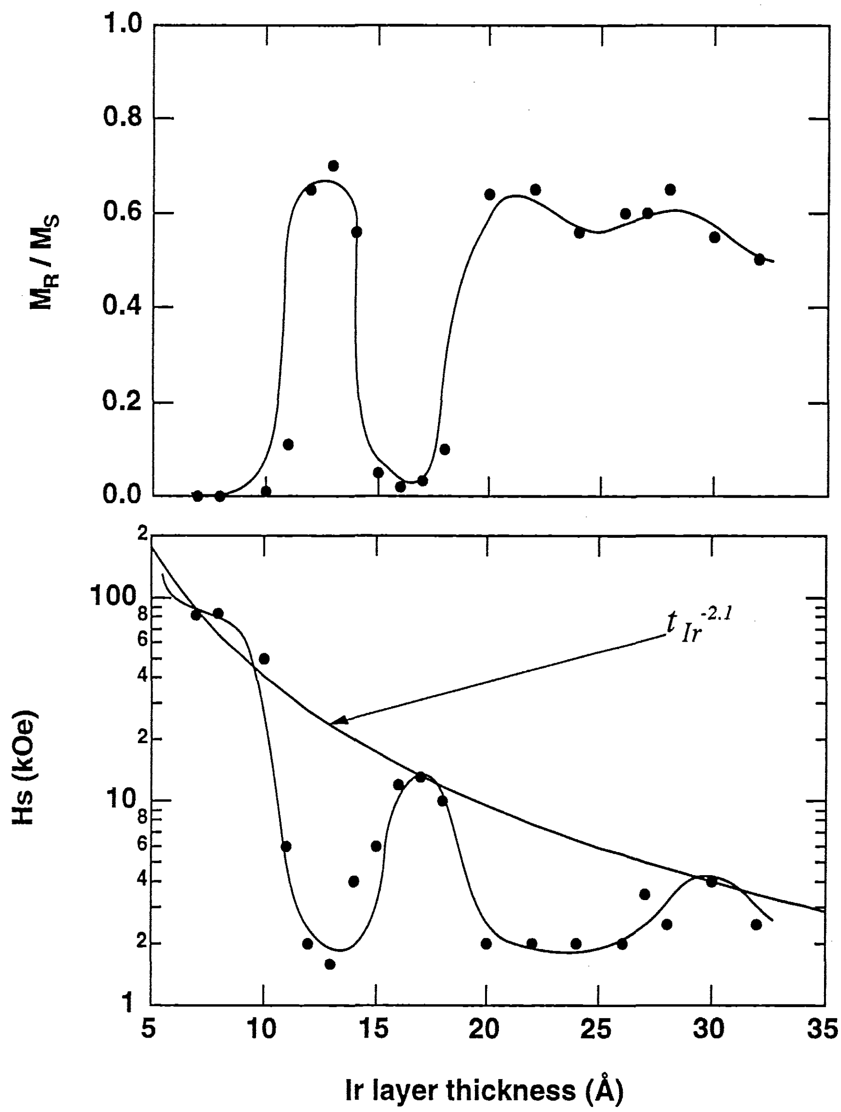


図 3.22: 飽和磁場 H_S ，残留磁化 M_R/M_S の Ir 層厚依存性.

第4章　X線磁気共鳴散乱法による非磁性Ir層内の磁気分極測定

4.1　はじめに

3章ではCo/Ir人工格子のMBE法による作製に成功した事を述べた．MBEによる試料はXRD的に大変コヒーレンスの良い，しかも磁気的にも明確に反強磁性結合を示す人工格子であり，そこでX線磁気共鳴散乱(XRES)法による磁気Bragg反射を観測する実験を行った．しかしながら実験はまだまだ予備実験といえる域をでておらず，本章では進行中のCo/Ir人工格子によるXRES研究を簡単に紹介するに留まる．

XRES法の最初の研究はNamikawaらの行ったNi K 端での測定であり，1985年のことである[1]．以降精力的に研究が進められた．磁性を持つ物質で，しかも測定エネルギーが回折実験に適当であったことから，特に希土類金属を中心にX線共鳴散乱[2],[3]という現象に対して研究が進められた．その後はUなどのアクチノイド系[4],[5]や $3d-5d$ などの遷移金属[6],[7],[8],[9]についても盛んに研究されるようになり，近年では世界各地で建設されている第3世代放射光施設の稼働により磁性体の有力な研究手段の一つとして確立されつつある．

磁性体の磁気秩序を観測する方法でまず思い浮かぶのは中性子線回折(ND)である．しかしながらNDでは入射線のコヒーレンスはX線に比べると悪く，したがって角度分解能も低い．また試料もある程度大きなものが要求される．磁化の小さな試料は現実的には測定できないといった問題がある．しかも中性子散乱ではその磁気散乱振幅は磁性イオンのスピンのみで決定するため，試料内に磁性原子が数種類存在する場合には区別をつけることは困難である．XRES法はある元素に注目してその吸収端近傍のX線を使用するために磁性原子を区別して測定することが可能である．しかもその原子が非常に弱い磁気モーメントしか持たない場合にも，磁気散乱振幅として大きな値になることから僅かな磁気分極を観測することが出来る．また光源として放射光を利用するため，非常にコヒーレンスの良いX線を

用いることが可能であり，NDに比べて分解能の高い測定を行うことが出来る．このように XRES法は磁性体の磁気秩序を測定するのに大変有力な手段であることが分かる．

本章で行った研究のねらいについて述べる．層間結合を示すような金属磁性人工格子においては，その隣り合う磁性層は非磁性内の伝導電子によってRKKY的に結合していると考えられる．そこで非磁性層内の磁気分極を上述したXRES法で観測する事を本章では目的としている．2章や3章で見た通り人工格子はXRDを用いるとその人工周期構造を反映した超格子反射が観測される．磁性層が強磁性配列している場合では人工格子の磁気秩序と構造周期とが一致するためXRDプロファイルから磁気散乱のみを分離することは難しいと考えられる．しかしながら反強磁性配列した状態ならば磁気秩序は構造周期の2倍になるはずであり，したがって磁気散乱に起因した超格子反射が人工周期構造を反映した超格子反射のちょうど真ん中に現れるはずである．強磁性層間に間接的な結合が生じている状態では，何らかの磁気分極が非磁性層内に生じていると考えられ，この非磁性層磁気分極も強磁性層の配列に依存して変化するものと考えられる．人工格子の反強磁性配列をXRESを利用して観測した研究として挙げられるものに，Ni/Ag多層膜におけるNi層の磁気的周期構造を観測した例[10]がある．この研究は軟X線を利用しNi L_{III} 端でのXRESを用いて(000)反射と $(000)_{+1}$ の超格子反射の丁度間に $(000)_{+\frac{1}{2}}$ のNiによる磁気散乱が観測されたものである．またFe/Gd人工格子のFe層とGd層が界面で反強磁性的に直接結合するため，人工格子としては2種類の強磁性層がフェリ的に配列する事を利用してGd層の磁気秩序を観測している例[11]もある．この場合は構造の超格子反射にGd層からの磁気的な反射が重なってしまうが，楕円偏光を利用して反射強度の非対称性を議論することにより，温度と共に変化する磁化配列をGd層から得られる磁気情報を通して観測している．これらの例は強磁性元素のXRES測定に関するものであるが文献[12]のように強磁性のDyと非磁性Luの単結晶合金膜を作製し，非磁性Luに誘起されたスピン波を観測した研究もある．

具体的な描像としては以下のような事を考えている．反強磁性結合しているCo/Ir人工格子において，Ir層での伝導電子はRKKY分極しており，この分極が局在性の高いIrの $5d$ バンドの分裂を誘起する．この $5d$ バンドの分裂をXRES法を用いて $2p \rightarrow 5d$ の L 端X線で観測しようというものである．しかもこのときの磁化配列は構造周期の2倍であるため磁気散乱のピークが超格子反射の谷間に観測されるはずである．ただしここで注意しなければならないことは，XRES法で観測されるものはIrの $5d$ バンドでのmajority spinとminority spin の差である．これが $6sp$ バンドの RKKY 分極によって誘導されたものであるのか，或いは Co/Ir 界面での $3d-5d$ hybridization によって生じたものであるのかは区別は付けられないということである．

4.2 X 線磁気共鳴散乱 (XRES)

本節では X 線磁気共鳴散乱 (XRES) の偏光依存性について Hill らの記述 [13] に従って述べる．

磁性イオンからの X 線の弾性散乱による散乱振幅は，

$$f = f_0 + f' + if'' + f_{spin} \tag{4.1}$$

となる．ここで $f_0 \propto Zr_0$ は Thomson 散乱であり電化による寄与である．また f_{spin} は非共鳴スピン依存散乱である．共鳴エネルギーから離れたところでの f' と f'' は軌道及びスピン角運動量に比例し以下のように表される．

$$f^{mag}_{non-res} = ir_0(\hbar\omega/mc^2)f_D[\frac{1}{2}\mathbf{L}(\mathbf{Q})\cdot\mathbf{A} + \mathbf{S}(\mathbf{Q})\cdot\mathbf{B}] \tag{4.2}$$

ここで $\mathbf{L}(\mathbf{Q})$ や $\mathbf{S}(\mathbf{Q})$ はそれぞれ原子軌道とスピン密度の Fourier 成分である．また

$$\mathbf{A} = 2(1-\hat{\mathbf{k}}\cdot\hat{\mathbf{k}}')(\hat{\epsilon}\cdot\hat{\epsilon}') - (\hat{\mathbf{k}}\times\hat{\epsilon})(\hat{\mathbf{k}}\cdot\hat{\epsilon}') + (\hat{\mathbf{k}}'\times\hat{\epsilon}')(\hat{\mathbf{k}}'\cdot\hat{\epsilon}) \tag{4.3}$$

$$\mathbf{B} = (\hat{\epsilon}\cdot\hat{\epsilon}') + (\hat{\mathbf{k}}'\times\hat{\epsilon}')(\hat{\mathbf{k}}'\cdot\hat{\epsilon}) - (\hat{\mathbf{k}}\times\hat{\epsilon})(\hat{\mathbf{k}}\cdot\hat{\epsilon}') - (\hat{\mathbf{k}}'\times\hat{\epsilon}')\times(\hat{\mathbf{k}}\times\hat{\epsilon}) \tag{4.4}$$

である [14]．$\mathbf{k}$ や $\mathbf{k}'$ は入射波と散乱波の波数ベクトルであり，ϵ と ϵ' は入射（散乱）X 線の偏光ベクトルである．$\mathbf{Q}=\mathbf{k}'-\mathbf{k}$ は散乱ベクトルを意味しており f_D は Debye-Waller 温度因子である．非共鳴での磁気散乱では散乱因子に $\hbar\omega/mc^2 \approx 1/60$ の因子があるため寄与としては charge に比べて小さな値となる．しかも磁性イオンの中で磁気モーメントに寄与する電子の割合は 1/10 程度であるから散乱因子のオーダー 1 としては/1000 程度になってしまうことがわかる．

ここまでは非共鳴の場合の散乱因子について述べたが，ここから共鳴散乱の場合について述べる．共鳴過程は f' と f'' の項に含まれており，ここでは電気と磁気の多重極遷移での共鳴過程が存在するが，磁気多重極遷移での共鳴は電気多重極遷移 (EL) に比べて小さいため

無視する．磁性イオンでの電気 2^L 極共鳴による散乱因子は以下のようになる [15].

$$f^{e}_{EL}(\omega) = (4\pi/|k|)f_D \sum_{M=-L}^{L} [\hat{\epsilon'}^{*} \cdot \mathbf{Y}^{(e)}_{LM}(\hat{\mathbf{k}}')\mathbf{Y}^{(e*)}_{LM}(\hat{\mathbf{k}}') \cdot \hat{\epsilon}']F^{(e)}_{LM}(\omega). \tag{4.5}$$

ここで $\mathbf{Y}^{(e)(\hat{k})}_{LM}$ はベクトル球面調和関数である．共鳴の強さは F_{LM} できまる．

$$F^{(e)}_{LM}(\omega) = \sum_{\alpha,\eta}[P_\alpha P_\alpha(\eta)\Gamma_x(\alpha M\eta; EL)/\Gamma(\eta)]/[x(\alpha,\eta) - i]. \tag{4.6}$$

η は励起状態そして α は初期状態を示している．P_α は初期状態 α での電子の存在確率を，そして $P_\alpha(\eta)$ は α から η への遷移確率を意味する．Γ_x は $|\eta) \to |\alpha)$ の EL 過程放射時での線幅であり，一方 Γ は，$|\eta)$ からすべての殻への放射と非放射（Auger 過程など）を含めた線幅であり，通常これは $1 \sim 10$eV 程度である．そして $x = (E_\eta - E_\alpha - \hbar\omega)/(\Gamma/2)$ は共鳴状態からのずれを共鳴の半値幅で表している．波長によっては $\Gamma_x/\Gamma \approx 10^{-2}$[16] であるから磁気共鳴散乱の大きさは $\approx 100r_0$ まで増大することもあり得る．

共鳴散乱の中で最も支配的な遷移は電気双極子遷移 ($E1$) であり，また表式としても最も単純であるため以下ではこの共鳴に絞って話を進める．例えば $2p_{3/2} \leftrightarrow 5d$ のような遷移は L_{III} 端近傍で生じ，このような $E1$ 遷移での共鳴ではベクトル球面調和関数が $L = 1, M = \pm 1$ か $L = 1, M = 0$ の時に生じる．n 番目のイオンが持つ磁気モーメントの単位ベクトルを $\hat{\mathbf{z_n}}$ とすると，XRES での散乱因子は，

$$f^{XRES}_{nE1} = [(\hat{\epsilon}' \cdot \hat{\epsilon})F^{(0)} - i(\hat{\epsilon}' \times \hat{\epsilon}) \cdot \hat{\mathbf{z_n}}F^{(1)} + (\hat{\epsilon}' \cdot \hat{\mathbf{z_n}})(\hat{\epsilon} \cdot \hat{\mathbf{z_n}})F^{(2)}] \tag{4.7}$$

ただし，

$$\begin{aligned} F^{(0)} &= (3/4k)[F_{11} + F_{1-1}] \\ F^{(1)} &= (3/4k)[F_{11} - F_{1-1}] \\ F^{(2)} &= (3/4k)[2F_{10} - F_{11} - F_{1-1}] \end{aligned} \tag{4.8}$$

である．

つぎに式 4.7 を 2×2 行列の形に書き下す．入射（散乱）する X 線の電場ベクトルの向き $\hat{\epsilon}(\hat{\epsilon}')$ を入射波 $\mathbf{k}$ と散乱波 $\mathbf{k}'$ で張る散乱面に対して垂直な成分 $\hat{\epsilon}_{//}(\hat{\epsilon'}_{//})$ と平行な成分 $\hat{\epsilon}_{\perp}(\hat{\epsilon'}_{\perp})$ に分ける．以後，$\hat{\epsilon}_{//} \to \hat{\epsilon'}_{//}$ を $\sigma \to \sigma$ 散乱と呼び，$\hat{\epsilon}_{\perp} \to \hat{\epsilon'}_{\perp}$ を $\pi \to \pi$ 散乱のように呼ぶ

ことにする．このようにすると入射と散乱でそれぞれ2つの偏光を持ちうることから，

$$\begin{pmatrix} \sigma \to \sigma & \sigma \to \pi \\ \pi \to \sigma & \pi \to \pi \end{pmatrix} \tag{4.9}$$

の様にそれぞれの偏光毎に成分を分離して記述できる．

図4.1のように定義した直交系を用いて f_{nE1}^{XRES} を書き直すと以下のようになる．ただしBragg角を θ とする．

$$\begin{aligned} f_{nE1}^{XRES} &= F^{(0)} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos 2\theta \end{pmatrix} - iF^{(1)} \begin{pmatrix} 0 & z_1 \cos\theta + z_3 \sin\theta \\ z_3 \sin\theta - z_1 \cos\theta & -z_2 \sin 2\theta \end{pmatrix} \\ &- F^{(2)} \begin{pmatrix} {z_2}^2 & -z_2(z_1 \sin\theta - z_3 \cos\theta) \\ z_2(z_1 \sin\theta + z_3 \cos\theta) & -\cos^2\theta({z_1}^2 \tan^2\theta + {z_3}^2) \end{pmatrix}. \end{aligned} \tag{4.10}$$

第1項は磁化に依存しない項であるが，第2項と第3項は磁化に依存することが分かる．第3項は磁化の2乗の成分を含んでいるため一般的にその寄与は第2項に比べて小さいと考えられる．散乱因子の大きさを議論するには F_{LM} を評価する必要があるが，詳細は文献[17]を参考にしていただきたい．

4.3 試料作製及び評価

試料は3章で述べた方法と同様に作製し評価を行った．XRES測定のために作製する試料には反強磁性(AF)結合があること必要条件となる．3章の結果からはっきりとしたAF結合を示す試料は，$t_{Ir} \approx 7$Å または2nd AFピークすなわち $t_{Ir} \approx 17$Å 近傍であることが明らかになったので，ここでは $t_{Ir} = 17$Å となる試料を選択した．1st AFではなく2nd AFのIr層厚を選んだ理由は以下の通りである．

- 非磁性であるIr層内の磁気分極は非常に小さいことが予想され，Irの総膜厚が厚い方が有利である．
- 磁場を印加する事によるXRES信号の変化がIr層内での磁気分極の決め手になるため，適当な大きさの磁場で飽和する試料の方が実験の制約が少ない．
- 積層周期が短いと磁気秩序に対応したピークは基本反射から離れた位置に観測される筈であり，観測強度は弱くなってしまう．

また一番目の理由で積層周期数も100回に増やした．作製したCo/Ir(001) 人工格子は以下のような設計になっている．

$$MgO(001)/Fe\ 12Å/\ Pt\ 50Å/\ Ir600Å/\ [Co\ 7Å/Ir\ 17Å]_{100}\ /\ Ir\ 33Å$$

RHEED観察では100周期目までストリークパターンは消えず2次元的な層状成長（Frank-van der Merwe 型）であることを確認した．

XRES測定用に作製した試料の二軸XRDの結果を図4.2に示す．積層周期数が多くなることによりCoとIrの界面におけるラフネスが増大し人工格子のコヒーレンスが低下することを懸念したが，50周期の試料に比べてもS/Nは高く周期数を多くしたねらいは成功した．以上の結果から構造的には50周期のものと同程度の良好な試料が出来ていることを確認した．

一方磁気的な性質であるが，こちらの方も50周期の試料と比べてほとんど同様の磁化曲線が得られた．むしろ全体としての磁気モーメントが増大したことによりこちらもS/Nが良くなっている．磁化曲線の温度依存性を図4.3に示す．温度を下げた理由は，XRES測定時に温度を下げる必要も考慮し，低温での振る舞いを事前に測定した．どの温度でも非常にはっきりとした反強磁性を示している．低温でヒステリシスが現れる理由は，Co層の保持力が増大すること，あるいは基板MgO中の磁性不純物の影響が現れることのどちらかではないかと考えられる．いずれにしても室温ではそのような傾向はみられず，約15kOeの磁場で十分飽和する試料である．

以上のようなことからXRES測定に十分適した試料が作製できたことを確認した．

4.4 X線磁気共鳴散乱測定

実験は97年7月に米国Brook Heaven Natioanal Laboratory 内 Natioal Synchrotron Light Source(NSLS) ビームラインX25において予備的な実験を行った．そして98年2月に同じく米国Argonne National Laboratory 内 Advanced Photon Source(APS) 33 station にて測定をした．NSLSにおける実験は，イリノイ大学M.B.Salamon教授，同K.O'Donovanと共に行った．またAPSでの実験はSalamon教授とO'Donovanによるものである．ここではAPSでの実験結果を述べる．図4.4にXRES散乱測定のレイアウトを記す．ディフラクトメータにはHuber社製の4軸回折系にさらに偏光解析用に2軸付け加わった6軸回折

計を使用した．ストレージリングからでてくる放射光は原理的には軌道面内ではその面内に電場ベクトルを持つ直線偏光であり，測定ではこの直線偏光成分のX線を利用する．したがって入射X線の $e_{//}$ 成分が主成分であり，この光が試料に当たることにより電荷による散乱X線と磁気的な原因の散乱X線が生じる．$e'_{\perp}$ は偏光面が 90° 傾いた成分となりしたがって磁気散乱による成分のみが含まれる．一方 $e'_{//}$ の場合偏光面は回転せず，charge の散乱と磁気散乱が両方含まれることになる．ここで回折角度 $\theta_A \approx 45°$ となるような analyzer 結晶を用いて偏光解析を行いシンチレイションカウンタに入るX線を選り分けるのであるが，ここで使用した analyzer 結晶は単結晶 Al(600) 面を使用した．これはちょうど Ir L_{II} 端 (12.824 keV) 近傍の共鳴エネルギーを用いた測定を行うときに有望な analyzer 結晶であり，このときの回折角度は $\theta_A = 45.8°$ となる．文献 [12] にならい $e'_{\perp}$ 成分をカウンターに入れる配置を $\sigma - \pi$ 配置と呼び，$e'_{//}$ 成分をカウンターに入れる配置を $\sigma - \sigma$ 配置と呼ぶことにする．式 4.10 から $\sigma - \pi$ 或いは $\pi - \sigma$ の配置で偏光解析を行うことにより，$\hat{\mathrm{k}} + \hat{\mathrm{k}}'$ 方向と，$\mathrm{Q} = \hat{\mathrm{k}}' - \hat{\mathrm{k}}$ 方向の磁気的な情報が得られることが分かる．試料の磁化は膜面内にあるため $\hat{\mathrm{k}} + \hat{\mathrm{k}}'$ が面内になる配置にする必要がある．

以下に実際の実験手順を述べる．まず回折計の光軸を調整し，試料を回折計に乗せる．尚試料は大気中に曝した状態で，室温における測定である．つぎに受光する強度を抑えるための attenuator を試料の手前に設置した状態で $\sigma - \sigma$ 配置での測定を行う．このときの入射X線エネルギーは吸収端より数十 eV 低いものを用いる．なお散乱ベクトルは膜面垂直方向（成長方向）とした．この状態で得られた回折パターンから AF ピークが観測されそうな測定に最も適した領域を吟味する．そして入射X線の吸収端を決めるためバッファ層の Ir(002) 反射のエネルギー scan を行う．入射X線の吸収端が決定した後，$\sigma - \pi$ 配置に変更して，入射X線のエネルギーを変えながら予め決めておいた領域の q-scan をおこなった．入射エネルギーは吸収端付近の約 20eV を数 eV の幅で変化させて測定した．入射X線の波長を変えた scan であるため $\theta/2\theta$scan ではなく，エネルギー依存をみるために q-scan をおこなっている．

4.5 結果及び考察

XRES の結果を示す前にまず実験室で測定した XRD の拡大図を図 4.5 に示す．丸で囲った $Q = 3.03\text{Å}^{-1}$ 近傍について XRES 測定を行った．この領域はちょうど基板 MgO(002) 反射の裾になっているが，これは大学の研究室に設置してある回折計を用いた結果であり，モノクロメータなどの光学系の違いや放射光の強い指向性により，XRES 測定の際には基板の寄与は図 4.5 でみるほどは大きくない．

図 4.6 に XRES 測定の結果を示す．回折計のレイアウトは $\sigma-\pi$ である．縦軸は測定エネルギーが 12.818, 12.816, 12.814keV の scan を resonance の信号であるとし，12.810, 12.805keV での scan を off resonance であるとしてバックグランドとしたときの差である．それぞれのエネルギーでの scan は入射側の ion chamber monitor の値を用いて強度を規格化した．AF 配列を特徴付けるピークは $Q = 3.032\text{Å}^{-1}$ に現れると期待されたが，図 4.6 では $Q = 3.028\text{Å}^{-1}$ にピークが現れた．MgO(002) 反射が低角側にありこの影響でピーク位置が Q の小さい方へシフトすること．そして回折計の誤差や或いは測定手続き上の誤差を考えるとこのピーク位置は概ね予想通りのものであるといえる．またこのピークのエネルギー分散は 8eV 程度であり，共鳴エネルギー幅としては非常に妥当な値である．共鳴エネルギー（12.816keV）自体も吸収端（12.824keV）から数 eV 低く，これまでに報告されている XRES 測定と矛盾しない．以上のことからこの観測されたピークが Ir の L_{II} 共鳴であると考えることは自然である．また偏光解析を行うことによってこのピークがみられることから Ir の共鳴磁気散乱が観測されたものと思われる．

残念ながら測定の途中で試料のビームスポットに焼けたような穴が生じてしまい，それ以降図 4.6 のようなピークは消失してしまった．この現象は NSLS において測定を行った時にも現れており，どちらの測定でも $\sigma-\pi$ 配置にして attenuator を取り除く前では試料表面に変化は見られなかった．原因としては入射 X 線が吸収端にかかることにより生じるものと考えられるが，現段階では不明な点が多い．

4.6 まとめ及び課題

以上現段階ではまだまだ予備的な実験が行われたにすぎないが，Co/Ir 人工格子の XRES 測定に関して得られた知見及び今後の課題を記したい．

Co 層間で反強磁性結合を示す Co/Ir(001) 人工格子において，IrL_{II} 端近傍の XRES 法を用いた X 線回折をおこなった結果，Ir 層内の磁気分極を示唆する結果が得られた．共鳴エネルギー幅は $\Gamma \approx$8eV，また共鳴エネルギーは 12.816keV であり，XRES としては適当な値であった．

測定中に膜表面が破壊されてしまうことから試料をクライオスタット中にいれてある程度低温で測定を行うといったように，測定に何らかの工夫が必要である．

観測されたピークが Ir の磁気分極によるものであることを確認するためには，L_{III} 端近傍の測定や，磁場を印加して Co 層を強磁性的に配列させることによるピーク強度の変化を調べる必要がある．

XRES の場合散乱因子は式 4.10 のように表されることから，$\sigma - \pi$ 配置で小角（$\theta \approx 0°$）の測定が可能であると考えられる．この場合は基板やバッファ層の寄与を無視できることから測定上有利であると思われる．

参考文献

[1] Kazumichi Namikawa, Masami Ando, Tetsuo Nakajima, and Hiroshi Kawata, J. Phys. Soc. Jpn, **54**, 4099(1985).

[2] Doon Gibbs, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills, and C. Vettier, Phys. Rev. Lett. **61**, 1241(1988).

[3] D. B. Pengra, N. B. Thoft, M. Wulff, R. Feidenhans, and J. Bohr, J. Phys.: Condens. Matter **6**, 2409(1994).

[4] E. D. Isaacs, D. B. McWhan, C. Peters, G. E. Ice, D. P. Siddons, J. B. Hastings, C. Vettier, and O. Vogt, Phys. Rev. Lett. **62**, 1671(1989).

[5] D. B. McWhan, C. Vettier, E. D. Isaacs, G. E. Ice, D. P. Siddons, J. B. Hastings, C. Peters, and O. Vogt, Phys. Rev. **B 42**, 6007(1990).

[6] F. de.Bergevin, M. Brunel, R. M. Galéra, C. Vettier, E. Elkaäım, M. Bessière, and S. Lefèbvre, Phys. Rev. **B 46**, 10772(1992).

[7] J. F. MacKay, C. Teichert, D. E. Savage, and M. G. Lagally, Phys. Rev. Lett. **77**, 3925(1996).

[8] S. Ferrer, P. Fajardo, F. de Bergevin, J. Alvarez, X. Torrelles, H. A. van der Vegt, and V. H. Etgens, Phys. Rev. Lett. **77**,747(1996).

[9] J. P. Hill, C. -C. Kao, and D. F. McMorrow, Phys. Rev.**B 55**, R8662(1997).

[10] J. M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, G. Soullié, B. Rodmacq, and P. Wolfers, Phys. Rev. Lett., **75**,740(1995).

[11] H. Hashizume, N. Ishimatsu, O. Sakata, T. Iizuka, N. Hosoito, K. Namikawa, T. Iwazumi, G. Srajer, C. T. Venkataraman, J. C. Lang, C. S. Nelson, and L. E. Berman, preprint.

[12] B. A. Everitt, M. B. Salamon, B. J. Park, C. P. Flynn, T. Thurston, and Doon Gibbs, Phys. Rev. Lett. **75**, 3182(1995).

[13] J. P. Hill, D. F. McMorrow, Acta Cryst. **A 52**,236(1996).

[14] M. Blume and Doon Gibbs, Phys. Rev. **B37**, 1779(1988).

[15] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, and Doon Gibbs, Phys. Rev. Lett. **61**, 1245(1988). ;Errata: Phys. Rev. Lett. **62** 2644.

[16] M. H. Chen, B. Craesmann, and H. Mark, Phys. Rev. **A 21**, 449(1980).

[17] Jin Luo, G. T. Trammell, and J. P. Hannon, Phys. Rev. Lett. **71**, 287(1993).

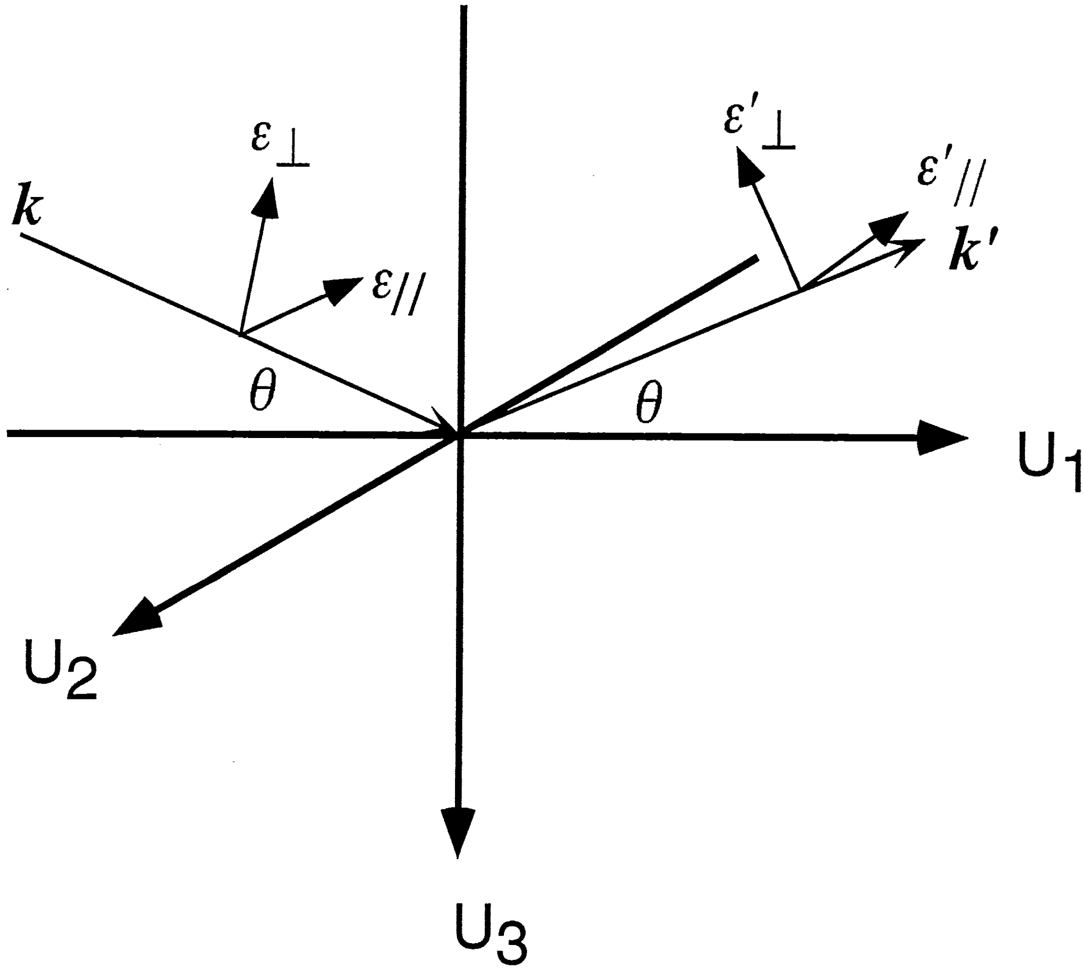


図 4.1: 計算に使用した直交系．θ は Bragg 角である．

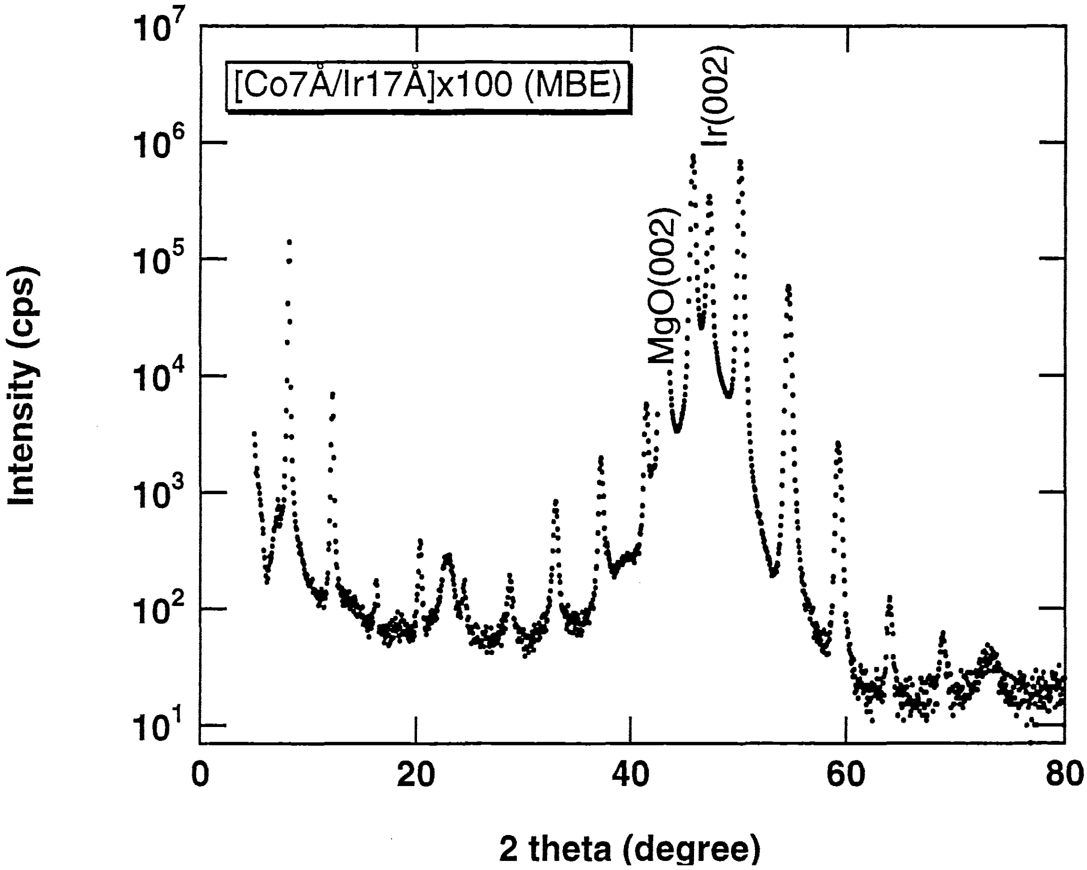


図 4.2: [Co7Å/Ir 17Å](001)$_{\times 100}$ 人工格子の二軸 XRD.

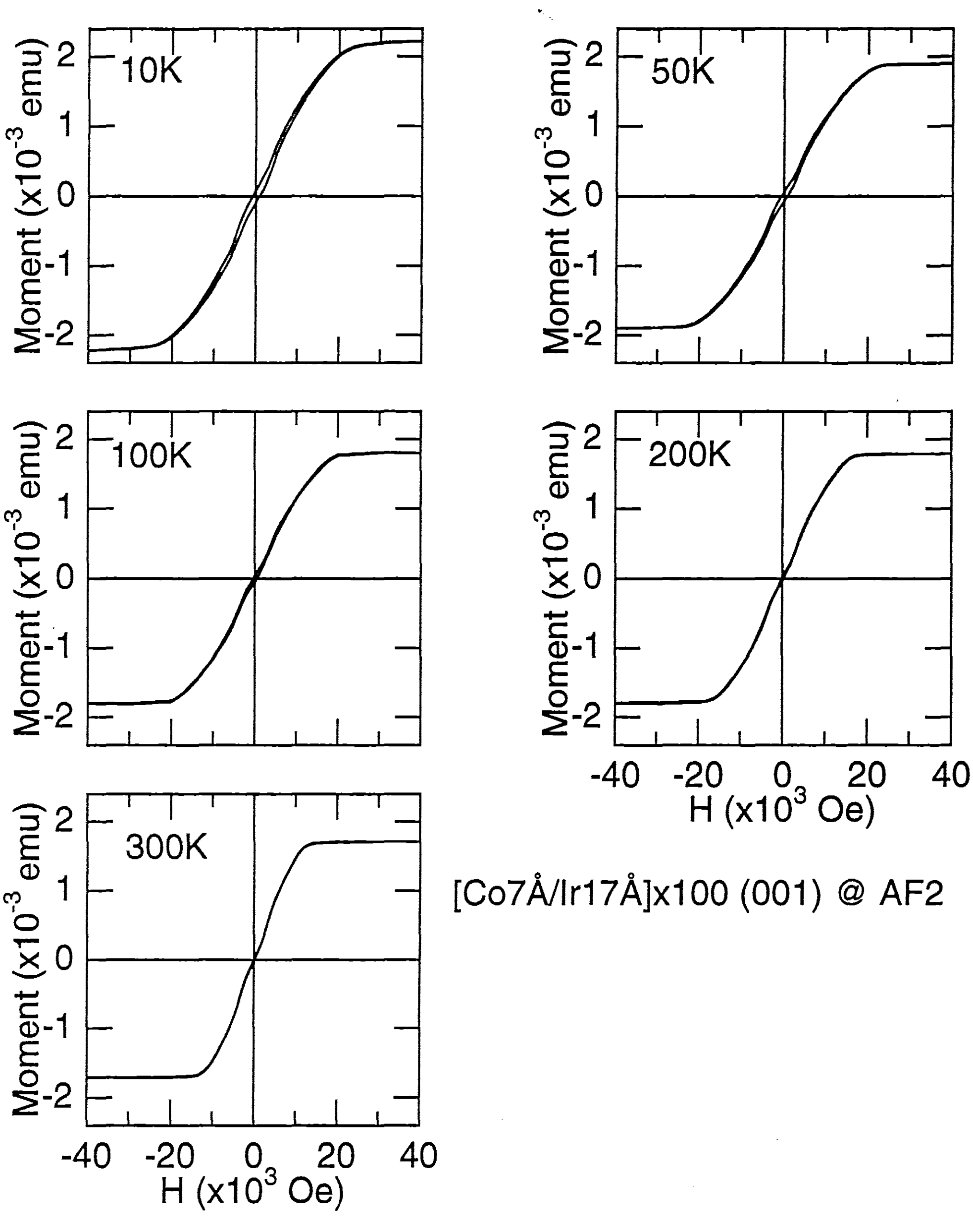


図 4.3: [Co7Å/Ir 17Å](001)$_{\times 100}$ 人工格子の MH 曲線の温度依存性.

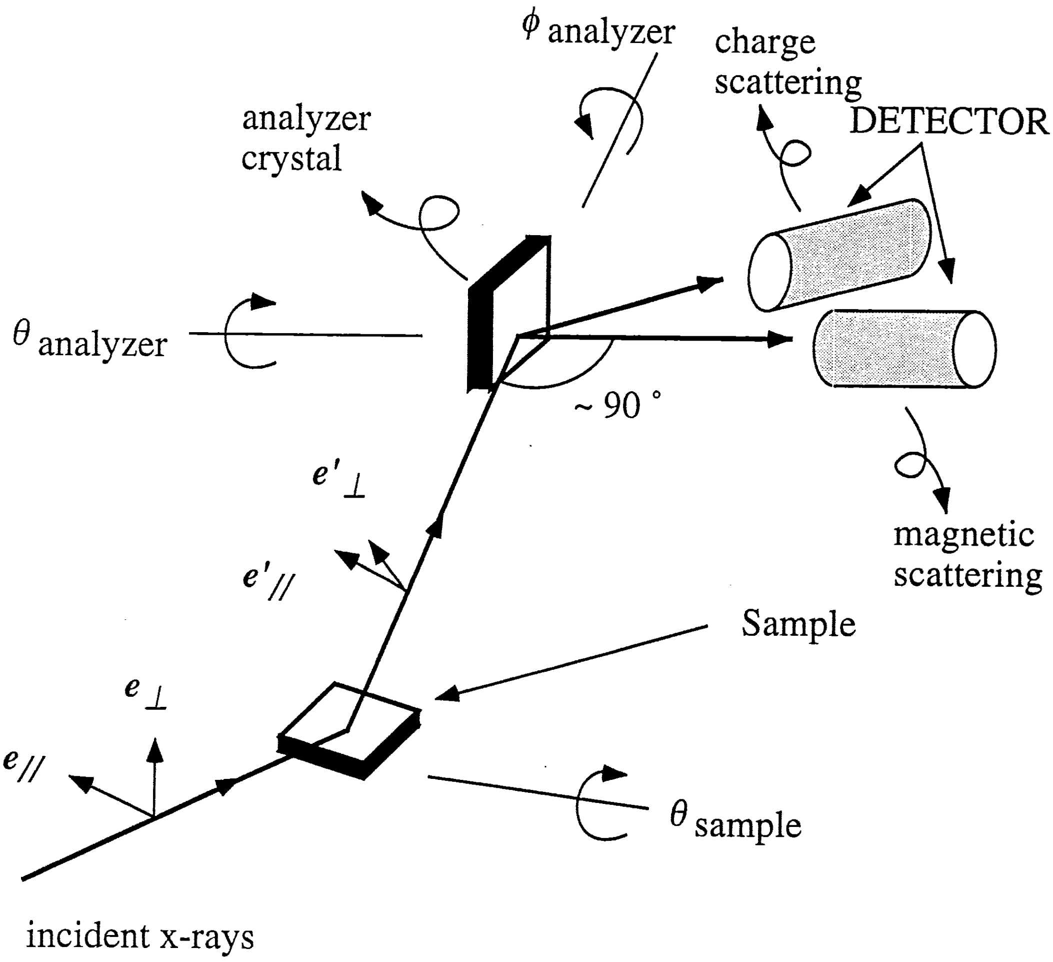


図 4.4: XRES 測定に用いたレイアウト.

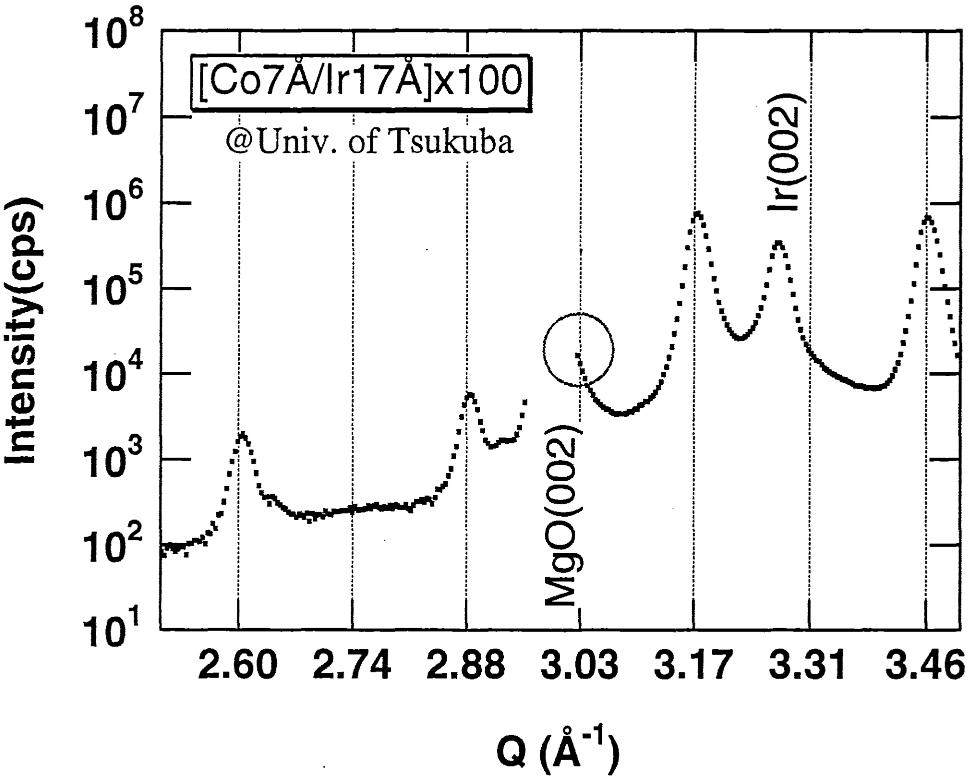


図 4.5: 二軸 XRD の結果（ 図 4.2 を拡大したもの）. 丸で囲った $Q = 3.03$ Å^{-1} 近傍について XRES 測定を行った.

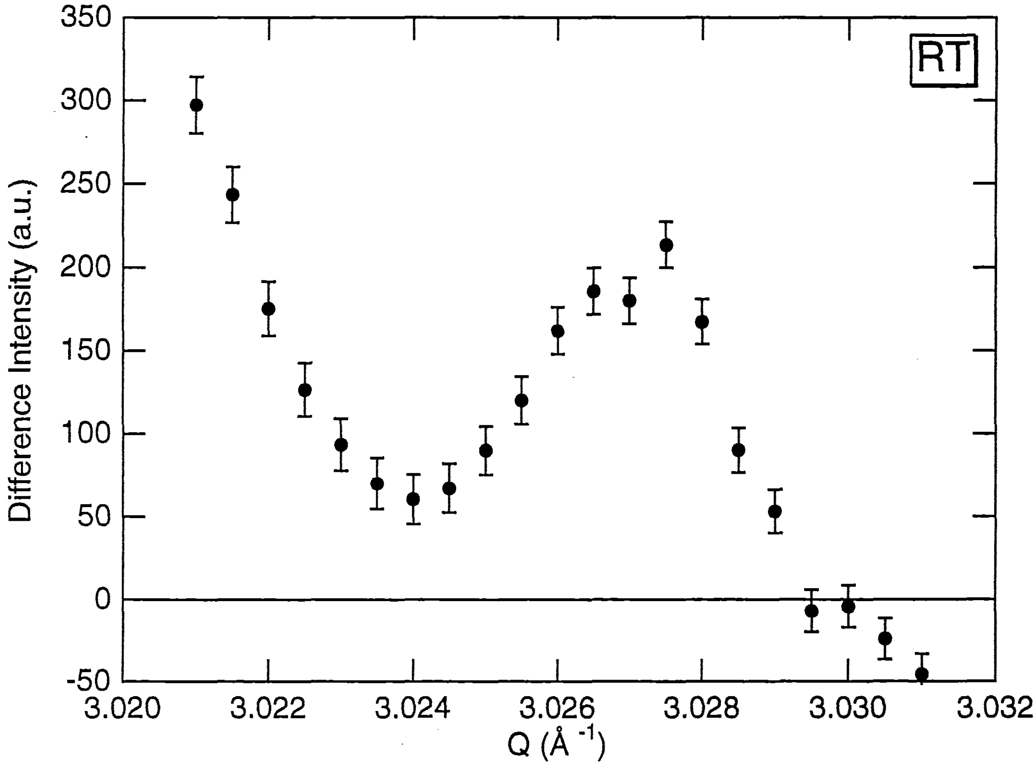


図 4.6: APS での磁気散乱測定の結果.

謝辞

まずなにより本研究を遂行するにあたり絶えずご指導，ご助言を戴きました本学物理工学系喜多英治助教授深く感謝いたします．本学名誉教授　田崎明先生とともに，自由でかつ，十分な研究環境を与えて下さり，本当に有り難うございました．

Co/Ir での磁気共鳴散乱という非常に革新的なテーマを与えて下さり，いろいろとご助言下さったイリノイ大学　M. B. Salamon 教授に大変感謝しております．

磁気抵抗測定の際には快く装置を貸して下さった金属材料技術研究所の中谷功博士および，同谷山智康博士に深く感謝します．

4 軸 X 線回折に関して何も分からなかった私に親切にご指導下さいました本学物理工学系大嶋建一先生，ならびに高橋靖彦博士に深く感謝しております．

放射光施設での実験を共におこなった K. O'Donovan 氏，K. Pettit 博士に感謝します．

研究室の皆さんにはとても感謝しております．とくに小野一修君には蒸着装置の改善・メンテナンスで大変お世話になりました．どうも有り難う．

最後に，長い学生生活を物質的にも精神的にも支えて下さった両親には，心より感謝しております．