

スピネルフェライトエピタキシャル薄膜の垂直磁気異方性

柳原英人^{1*}, 井浦 真¹, 喜多英治¹

¹筑波大学大学院数理物質科学研究科電子・物理工学専攻

*yanagiha@bk.tsukuba.ac.jp

1. はじめに

$\text{Fe}(\text{Fe}, M)_2\text{O}_4$ の化学式で表されるスピネルフェライト群は、古くからよく研究されておりその物性についても多くのことが理解されている物質である。スピネル結晶構造の B 位置と呼ばれる格子位置には様々な遷移金属 (M) が入り、この M によってスピネルフェライトは、軟磁性から高保磁力まで様々な磁性を示すことが知られている。なかでも CoFe_2O_4 は、 Co^{2+} イオンが結晶場の中にあっても比較的大きな軌道モーメントをもつため、強い磁気異方性を示すことが古くから知られていた。また Fe のみからなるスピネルフェライトのひとつ $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (B 位置に空格子を含むため、 $\text{Fe}(\text{Fe}_{5/6})_2\text{O}_4$) では、すべて Fe^{3+} によって構成されるため、軌道角運動量は消滅し、その結果磁気異方性は小さいものと思われるが、バルク試料が存在しないため、詳細は不明であった。

さてスピネルフェライトの多くは、反応性 MBE により原子層単位で平滑で高品位な薄膜を得ることができる。また CoFe_2O_4 を配向させたエピタキシャル薄膜にすることで、結晶格子を歪ませ、磁気弾性結合を通じて生じる一軸の磁気異方性が期待され、実際に垂直磁化膜になるという報告もある[1]。われわれは、良質な CoFe_2O_4 薄膜を作製し、定量的な評価をすることにした。また純オゾンを用いた場合にも得られる $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 薄膜についてもその磁気異方性についてしらべた。

2. 実験方法

試料作製は純オゾンを用いた MBE 装置にて行い、基板は $\text{MgO}(001)$ へき開基板をもちいた。 CoFe_2O_4 薄膜は、Fe と Co の 2 種類の物質を同時に蒸発させる 2 元同時蒸着で成長させた。一方 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 薄膜は、Fe のみを酸化源として成長させた。成膜中の薄膜表面の様子は RHEED により、リアルタイムで観察した。磁化測定は室温で VSM を用いて $H = \pm 11$ kOe まで印加して測定した。また、磁気トルクあるいは、FMR の測定を行い、磁気異方性の評価をおこなった。また、室温での内部転換電子型メスバウア分光測定も行った。

3. 結果および考察

Co と Fe の組成にかかわらず、 $(\text{Co}, \text{Fe})_2\text{O}_4(001)$ の RHEED 像にはシャープなストリークや菊池線が現れており、平滑でかつ高い結晶性が確認できた(図 1)。また鏡面反射成分の強度が $(\text{Co}, \text{Fe})_2\text{O}_4(001)$ の 1/4 層の膜厚に対応して振動した。これらの傾向は、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 薄膜の成長時にも同様であった。メスバウア分光測定の結果、 $(\text{Co}, \text{Fe})_2\text{O}_4$ および $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ のどちらも磁化が膜面内から

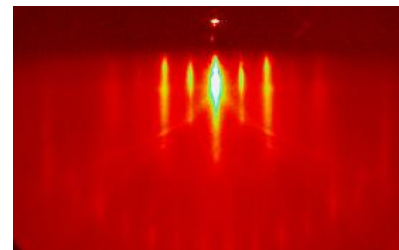


図 1 $(\text{Co}, \text{Fe})_3\text{O}_4(001)$ の RHEED 像

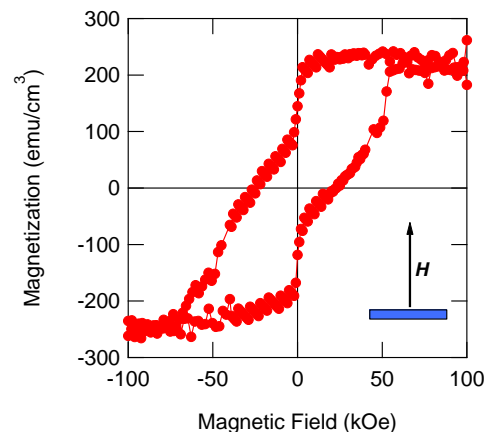


図 2 $(\text{Co}, \text{Fe})_3\text{O}_4(001)$ の室温における磁化曲線

垂直方向に立ち上がっていることが確認された。

磁化測定の結果、 $H_C \sim 23 \text{ kOe}$ 、飽和磁化 250 emu/cm^3 であり、一斉回転モデルを仮定するとその一軸異方性定数は、 $K_u \sim 3 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ であると見積もられた(図2)。しかしその角形比は1に較べて明らかに小さく、典型的な垂直磁化膜である MnBi に見られるようなストライプ磁区に特徴的な磁化曲線であった[2]。この一軸性磁気異方性の起源については、 $\text{MgO}(001)$ 基板との格子不整合が磁気弾性結合を通じて現れたものであると考えられるが、定量的にはまだ明らかになっていない。現在、組成、膜厚等をパラメータとして磁気異方性との関係を調べている。

一方 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 薄膜は FMR の結果、 $K_u \sim 6.1 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ の垂直磁気異方性をもつことがわかった(図3)。この異方性定数は、形状磁気異方性 ($9.1 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$) と較べてわずかに小さいため、垂直磁化膜とはならなかった[3]。

$\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ では、アニオンはすべて Fe^{3+} であるため $L=0$ であり、スピン軌道相互作用ではこの垂直磁気異方性を説明できない。そこで結晶の歪を評価するため RHEED 像および XRD 解析を行ったところ、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ は $c/a \sim 1.03$ の正方晶であることがわかった。この歪を考慮して双極子エネルギーを計算したところ、 $K_u^D \sim 6.7 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ となり、実験結果をよく説明できた。

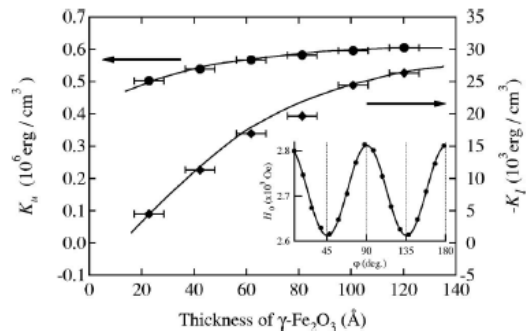


図 3 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3(001)$ の磁気異方性定数の膜厚依存性。異方性定数は FMR により見積った。

4. まとめ

$\text{MgO}(001)$ 上に純オゾンを用いて成長させた $(\text{Co}, \text{Fe})_2\text{O}_4(001)$ および $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3(001)$ 薄膜はどちらも垂直磁気異方性を示すことを確認した。Co フェライトの磁気異方性は、 MgO との格子ひずみに起因していると考えられ、 Co^{2+} イオンに大きな軌道磁気モーメントが残っていることでスピン軌道相互作用を通じて強い垂直磁気異方性が現れたものと考えられる。一方 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3(001)$ の場合は、結晶構造そのものが本質的に歪んでいて正方晶になっていることと、それに伴う磁気双極子エネルギーの結果、比較的大きな垂直磁気異方性が生じたものと考えられる。

- [1] P. C. Dorsey, P. Lubitz, D. B. Chrisey and J. S. Horwitz, J. Appl. Phys., 79, 6338 (1996).
- [2] D. Chen, J. Appl. Phys., 37, 1486 (1966).
- [3] H. Yanagihara, J. Hagiwara, M. Nakazumi, Eiji Kita, and T. Furubayashi, Appl. Phys. Lett., 91, 072508 (2007).