

Galvanomagnetic Effect in Tri-layered Py/Cu/Py Ring Structures

K. Sekiguchi, A. Yamaguchi, and H. Miyajima

Department of Physics, Faculty of Science and Technology, Keio University, 3-14-1 Hiyoshi, Kohoku, Yokohama 223-8522

Magnetization reversal in nano-structured Py/Cu/Py rings was investigated in terms of the giant magnetoresistance effect (GMR). The magnetization reversal was well regulated when a magnetic field was applied parallel to the arm axis, and the GMR effect reached about 1.5%. When the external magnetic field was tilted from the arm-plane, pinning (or depinning) of the domain wall was observed in both wire and rings. This demonstrates that the GMR of a tri-layered structure is sufficiently sensitive to detect pinning (or deppining) of domain-wall motion in a nano-scaled ring, indicating that the present ring system is promising as a means for measuring the interference of electron motion affected by inhomogeneous magnetization distribution.

Key words: nanoring, giant magnetoresistance, thin film, quantum interference

複合構造 Py/Cu/Py ナノリングにおける電流磁気効果

関口康爾・山口明啓・宮島英紀

慶應義塾大学理工学部, 横浜市港北区日吉 3-14-1 (〒223-8522)

1. はじめに

磁性金属の電気伝導特性は磁化分布と深く関係する。人工格子など多層膜における磁気モーメントの配列は巨大な抵抗変化(巨大磁気抵抗効果:GMR 効果)を生じ, 逆に電流はナノスケール磁性体の磁化状態に影響を与える¹⁾。電子スピンと磁化分布・磁壁との相関関係を解明する上で, ナノスケール磁性体における電流誘起磁壁移動²⁾, スピン注入磁化反転³⁾の研究があるが, ミクロスコピックなレベルでは低温における量子効果の方が議論しやすい。たとえばリング状導体の磁気抵抗効果を極低温で測定すると, 量子コヒーレンスによって磁束量子 h/e を単位とする振動現象 (Aharonov-Bohm 振動) が現れる⁴⁾。電子スピンと磁化分布・磁壁との相関関係は, この電気伝導特性において重要な寄与をする。しかし実験的に磁性体の内部磁場, 磁壁の寄与を検出した例はなく, 強磁性金属におけるデコヒーレンス機構は未解明となっている。わずかに, 強磁性金属 Py (Fe₁₉Ni₈₁) ナノリングにおいて磁気抵抗が振動する可能性が報告され⁵⁾, 理論的に強磁性ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動が議論されるにとどまっている⁶⁾。そこで我々は強磁性金属によるデコヒーレンス機構を非磁性金属中の Aharonov-Bohm 振動に対する変調として検出することを目的とする。

本研究では直径 500 nm ほどの複合構造ナノリング (強磁性金属/非磁性金属/強磁性金属からなる三層構造リング) を作製し, 磁化反転を制御した量子干渉計となりうるか調べた。磁化分布は形状磁気異方性によってリング円周方向に沿った方がエネルギー的に安定となるが, 線幅がサブミクロン程度のリングでは多磁区構造になる可能性もあるため⁷⁾, リング線幅を 50 nm とした。二つの磁性層の相対的磁化配向を変化させ, これを GMR 効果で検出し磁化反転過程を調べた。

2. 実験方法

複合構造ナノリングはリングおよびリングに接続する細線 (アーム) からなる (Fig. 1)。試料は電子線リソグラフィおよびリフトオフ法を用いて作製した。はじめに, シリコン熱酸化基板上に電子線レジスト (ZEP520A) を塗布し, スピンコート (膜厚~130 nm), ベークを順に行った。20 keV 電子線でレジストにパターンニングをした後, Py/Cu/Py の三層膜構造を超高真空蒸着装置によって作製した。薄膜作製中の真空度は 10^{-8} Torr 台とした。その後, 剥離液 (2-ブタノン) によってレジストを剥離した。電流端子, 電圧端子をふくめて三層構造となっており, Py/Cu/Py の三層膜厚は 20 nm/10 nm/5 nm である。リングの外径・内径をそれぞれ 500 nm, 400 nm とし, 電圧端子間距離を 3 μm とした。なお極低温実験では電圧端子間距離を 2 μm とし, 試料の発熱をおさえた (電圧端子とリング間の距離によって磁化反転が変化しないことは, マイクロマグネティクスシミュレーションによって確認した)。

電流磁気効果を測定する前に強磁場 (>10 kOe) を面に印加して複合構造ナノリングの磁性層の磁化を一方向

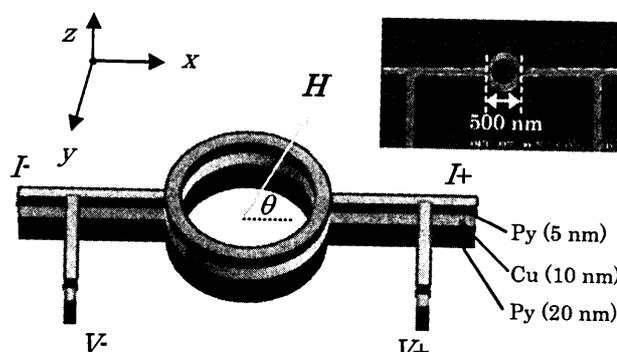


Fig. 1 Schematic illustration of a tri-layered ring structure attached with arms (SEM image is shown in the inset). The distance between the voltage terminals is 3 μm . An external magnetic field is applied with a tilting angle of θ .

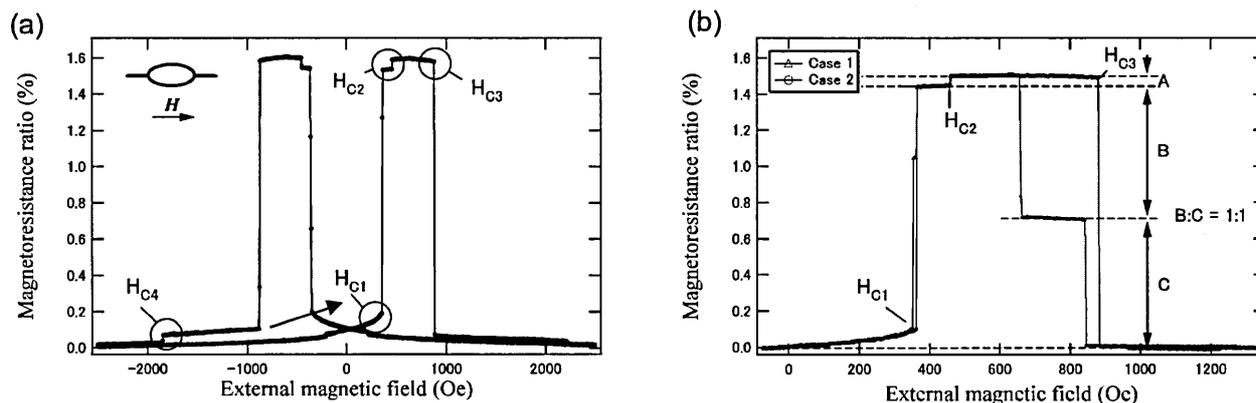


Fig. 2 Magnetoresistance of the tri-layered ring measured at 77 K. (a) The discrete changes at H_{c1} , H_{c2} , H_{c3} , and H_{c4} correspond to the magnetization reversals in the 20-nm- and 5-nm-thick magnetic layers. (b) Two patterns of magnetoresistance observed at $\theta = 0^\circ$.

にそろえた。その後、相対的な磁化配向を平行から反平行にするために、外部磁場をアーム軸と角度 θ 傾けて印加した (Fig. 1)。測定は 77K と希釈冷凍機を用いた極低温 (120 mK, 4.2 K) で行い、電気抵抗を交流四端子法によって測定した。外部磁場の掃引速度は 1 Oe/sec である。

3. 複合構造ナノリングにおける磁化反転過程

3.1 磁化反転過程

Fig. 2 (a) に 77 K における、 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線を示す。初期抵抗値 $R(T=77\text{ K}, H=0\text{ Oe}) = 227.66\ \Omega$ であり、磁気抵抗比 ($MR = (R_{AP} - R_P) / R_P$) に換算してある。Fig. 2(a) の矢印のように、抵抗値は外部磁場 (50 Oe) から徐々に増加して H_{c1} (=388 Oe) 付近で急激に増加する。 H_{c2} 付近で比較的小さい抵抗変化を示した後、 H_{c3} (=880 Oe) において抵抗値が急激に減少して最小値となる。これは H_{c1} 付近から二つの磁性層のうち一方の磁化反転が開始し、 H_{c2} において試料の二磁性層の磁化配向が平行状態から反平行になり、 H_{c3} において反平行から平行状態になったために生じたものと考えられる。MR比にして 1.5%，磁気抵抗曲線は $H = 0\text{ Oe}$ に対してほぼ対称となっており、 H_{c2} 、 H_{c4} における不連続な抵抗変化は等しい。

GMR 効果は、磁性層の磁化が反平行状態になっている部分の長さに比例するので、等価回路解析によって定量的に磁化反転部分を考察することができる。磁化反転は主にリングの上半分と下半分 (長さ $l_{\text{half-ring}}$) および二本のアーム (長さ l_{arm}) に分けられ、リング部分を並列回路とみなすと試料抵抗は

$$R = 2R_{\text{arm}} + R_{\text{half-ring}} / 2 = \frac{\rho l_{\text{half-ring}}}{S} \left(\frac{2l_{\text{arm}}}{l_{\text{half-ring}}} + \frac{1}{2} \right) \quad (3.1)$$

と与えられる。 S はリング・アーム部の細線断面積である。実験値より反平行状態の抵抗値 R_{AP} と平行状態の抵抗値 R_P が求められるので、式 (3.1) 中の電気抵抗率 $\rho_{(AP, P)}$ を定めることができる。この解析によるとリング上半分 (または下半分) の磁化反転による抵抗変化比とアーム二本の磁化反転の MR 比はおよそ 1 : 13 となる⁹⁾。Fig. 2 (a) の H_{c2} 、 H_{c4} における不連続な抵抗変化を 1 とすると、 H_{c1} における抵抗変化が 13、 H_{c3} における抵抗変化が 14 (=1+13) となっている。すなわち H_{c1} ではアーム二本の反転が生じ、 H_{c3} ではリング半分 (上半分または下半分) とアーム二本が同時に反転しており、 H_{c2} と H_{c4} ではリング半分 (上半分または下半分) が磁化反転しているとわかる。

角度 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線には Fig. 2 (b) に示すように二つのパターンが測定された。 H_{c3} における抵抗変化が一段階のときと二段階になる場合である。二段階になる場合、B と C で示した抵抗変化が 1 : 1 となるところに階段が生じる。 H_{c3} における抵抗変化がリング半分とアーム二本の磁化反転に対応しているため、アームがそれぞれ独立に反転して B と C で分離したことがわかる。

角度 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線だけでは 20 nm 層と 5 nm 層のいずれが先に反転したかはわからない。そこで磁化反転に関してマイクロマグネティクスシミュレーションを行った。Cu 層が 10 nm であるので Py 層間の結合は考えず、20 nm 層および 5 nm 層それぞれ独立にシミュレーションした。その結果、5 nm 層が早く反転することが示された。Fig. 3 に磁化反転過程を示す。20 nm 層ではリング下半分と二本のアームの磁化が一斉に反転し、リング部分が環流磁区構造を経る (C1)。一方、5 nm 層ではリング部分の磁化反転は磁壁移動によって段階的に進行した。5 nm 層が磁壁移動によって早く反転を始めるのは、5 nm 層の方が反転核の体積が小さく磁壁生成が容易であるためと考えられる。実験的にも H_{c3} 付近の抵抗が急激に減少するのに対して H_{c1} 付近の抵抗が徐々に増加しており、20 nm 層よりも 5 nm 層の形状磁気異性が弱く磁化が反転しやすいためと考えられる。5 nm 層が先に磁化反転するシミュレーション結果は、等価回路の解析結果に矛盾しない。更に、ナノスケール磁性体 Py では 5 nm 層の保磁力が 20 nm 層よりも小さいことが報告されており¹⁰⁻¹¹⁾、以上の考察とよく一致する。

角度 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線だけでは 20 nm 層と 5 nm 層のいずれが先に反転したかはわからない。そこで磁化反転に関してマイクロマグネティクスシミュレーションを行った。Cu 層が 10 nm であるので Py 層間の結合は考えず、20 nm 層および 5 nm 層それぞれ独立にシミュレーションした。その結果、5 nm 層が早く反転することが示された。Fig. 3 に磁化反転過程を示す。20 nm 層ではリング下半分と二本のアームの磁化が一斉に反転し、リング部分が環流磁区構造を経る (C1)。一方、5 nm 層ではリング部分の磁化反転は磁壁移動によって段階的に進行した。5 nm 層が磁壁移動によって早く反転を始めるのは、5 nm 層の方が反転核の体積が小さく磁壁生成が容易であるためと考えられる。実験的にも H_{c3} 付近の抵抗が急激に減少するのに対して H_{c1} 付近の抵抗が徐々に増加しており、20 nm 層よりも 5 nm 層の形状磁気異性が弱く磁化が反転しやすいためと考えられる。5 nm 層が先に磁化反転するシミュレーション結果は、等価回路の解析結果に矛盾しない。更に、ナノスケール磁性体 Py では 5 nm 層の保磁力が 20 nm 層よりも小さいことが報告されており¹⁰⁻¹¹⁾、以上の考察とよく一致する。

3.2 磁場印加角度依存性

Fig. 4 (a) に角度 $\theta = 30^\circ$ 、Fig. 4 (b) に $\theta = 60^\circ$ における電流磁気効果を示す。 $\theta = 30^\circ$ において依然として角形の抵抗変化を示しており、 $\theta = 0^\circ$ (Fig. 2) の磁気抵抗

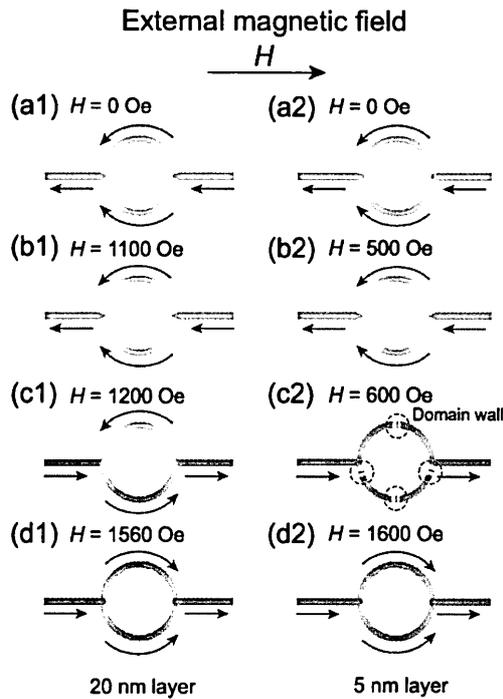


Fig. 3 Micromagnetics simulation for the magnetic layers using the OOMMF program⁹⁾ with a two dimensional grid ($5 \times 5 \text{ nm}^2$). Figures (a1) - (d1) show the magnetization reversal in a 20-nm-thick layer, and (a2)-(d2) show that in a 5-nm-thick layer. Note that, in the 5-nm layer, the magnetization reversal of the ring part is dominated by a domain-wall motion.

曲線に加え、図に示したように最初の磁化反転過程において二段階の変化が現れた。これは5 nm層における二本のアームの磁化反転が一本ずつ進行していることを示している。 $\theta = 60^\circ$ では、異方性磁気抵抗効果 (AMR 効果) の寄与が大きくなり、磁気抵抗曲線はなだらかに減少する成分を含む。磁化反転過程は基本的には Fig.4 (b) Case1 のように、反転磁場 H_{c1} および H_{c3} がそれぞれ 471 Oe, 1150 Oe と増加する。磁化反転において面内成分が主要な寄与をするためと考えられるが、磁場の面内成分のみが磁化反転に寄与にすると仮定したときの反転磁場 708 Oe ($=354/\cos 60^\circ$) に比べて小さい (Fig. 5)。

$\theta = 60^\circ$ では複雑な抵抗変化が観測された(代表的な例を Case2~Case5 として示した)。この場合、磁化反転は $H = 240 \text{ Oe}$ 付近から階段状に進行しており、 $\theta = 0^\circ$ (Fig.2)における反転磁場 ($H=354 \text{ Oe}$) よりも減少する。注目する点は、先に反転する磁性層では5~7段階のステップを経るのに対し、後で反転する磁性層では2~3段階程度と変化しない点である。これは5 nm層におけるアーム部分の磁化反転では磁壁がピンニング・デピンニングを繰り返して移動へと変化するのに対して、20 nm層では一斉に磁化が反転するためと考えられる。最初のステップ (GMR 効果) が始まる磁場を H_{DW} として、これを Fig. 5にプロットした。角度を増加させると H_{DW} は減少する。これは面に垂直な磁場成分の存在によって、ピンニングサイ

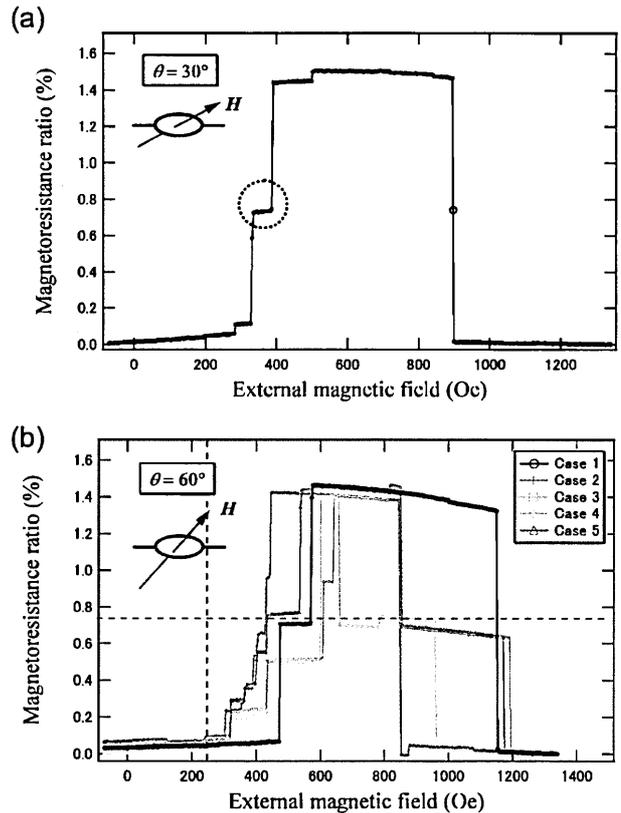


Fig. 4 Angular dependence of the magnetoresistance. The tilting angles of the magnetic fields are (a) $\theta = 30^\circ$ and (b) $\theta = 60^\circ$, respectively (see the inset). When the tilting angle θ is increased, the tri-layered ring exhibits various resistance changes, indicating a domain-wall motion.

ト (表面ラフネス、欠陥など) に磁壁が作り出されていることを示している。面に垂直な磁場成分がどのように磁壁を生成するかわからないが、Fig.1にある電圧端子とアームのT字型接合部分、リングとアームの接合部分と考えられる。接合部分では磁化方向が直交している (Fig.1の

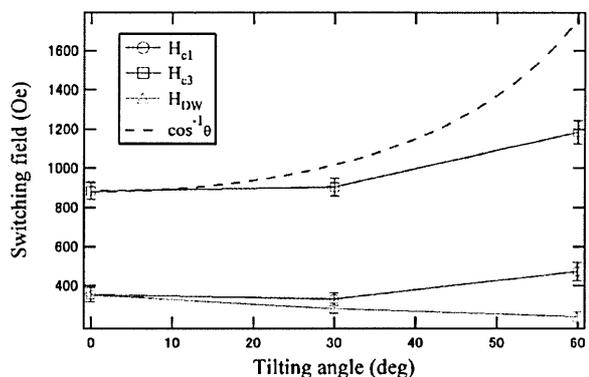


Fig. 5 Angular dependence of the switching fields. The plotted data are the averaged values. Note that H_{DW} decreases with increasing tilting angle θ , implying that the nucleation of domain walls is induced by the field component perpendicular to the sample plane.

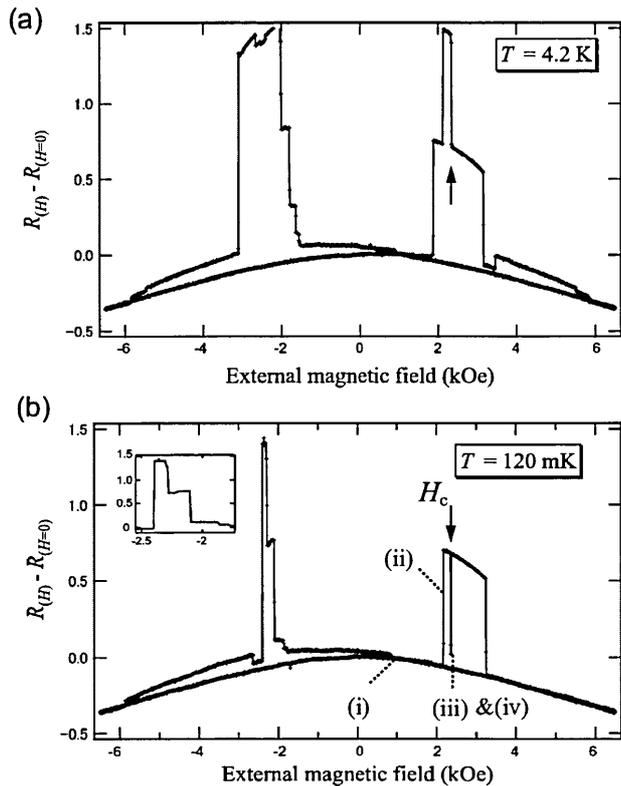


Fig. 6 Magnetoresistance with tilting angle $\theta = 60^\circ$ at (a) $T = 4.2$ K and (b) $T = 120$ mK. The inset in (b) shows the enlarged magnetoresistance in the range $-2.5 < H < -1.7$ kOe.

x, y 方向)ため、外部磁場の垂直成分 (z 方向) が印加されると、磁化方向が試料面から立ち上がりやすく磁壁が生成される。これが磁化反転の芽になると考えられる。

これらの結果、複合構造ナノリングにおいては磁壁移動を詳細に捉えられることがわかった。磁化反転過程を制御した量子干渉計を作製する上で重要な意味を持つ。特に $\theta = 60^\circ$ では磁壁を段階的に移動させることができるため、磁壁の効果を調べることが可能となる。

4. 極低温における磁化反転過程

4.1 磁化反転

Fig. 6 に極低温 ($T = 4.2$ K と $T = 120$ mK) における電流磁気効果を示す。Fig. 6 では、GMR 効果が生じる磁場が 2 kOe 付近と大きくなっており、AMR 効果が磁気抵抗曲線に顕著に見られている。反転磁場の増大は低温による効果であり、実際 $T = 120$ mK の方が $T = 4.2$ K よりも 300 Oe 程度反転磁場が大きい。実験的に GMR 効果のステップ個数は測定毎に異なり、極低温では段階的な磁壁移動が生じやすいことを示唆していた。

Fig. 6 (b) の磁場 H_c (矢印) に見られるように、極低温における磁化反転過程には不連続な変化がしばしば観測された。なお、 $H = 2$ kOe と $H = 3$ kOe における抵抗変化が一本のアームの反平行状態に対応する。飽和過程 ($H > 6$ kOe) に大きな抵抗変化が存在しなかったため、

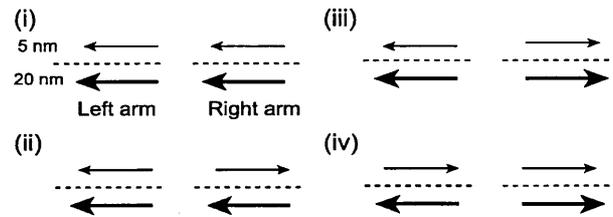


Fig. 7 Possible scenario of the magnetization reversal at H_c . The arrows represent the in-plane components of the magnetization vector in each magnetic layer.

磁場 H_c でアーム一本分とリングの磁化反転が生じていなければならない。スパイク状の変化なので一見ノイズによるものと考えられるが、GMR 効果で説明することができる。ただしこの場合、5 nm 層のアーム一本に続いて 20 nm 層のアーム一本が反転し、保磁力の逆転が生じたと考えられる。Fig. 7 に模式図で磁化反転過程を示す (なお簡単のためリング部分の磁化反転は無視した)。はじめに二本のアームの磁化が平行状態(i)にあり、(ii)につづいて外部磁場 H_c において(iii)(iv)と連続的に生じたと考えれば Fig. 6(b) の変化も説明することができる。

5. まとめ

本研究では複合構造ナノリングにおける電流磁気効果を調べた。その結果、三層構造による GMR 効果 ($\sim 1.5\%$) によって磁化反転過程を同定することができ、磁場印加角度によって磁壁移動による反転過程を誘起できることがわかった。極低温においても磁化反転過程を説明できるため、複合構造ナノリングは磁化反転過程を制御した量子干渉計として有望である。

謝辞 本研究は、文部科学省・科学研究費による補助を受けて行われた。また、日本学術振興会 (JSPS) 特別研究員として支援を受けた。

References

- 1) J. C. Slonczewski: *J. Magn. Magn. Mat.*, **159**, L1(1996).
- 2) A. Yamaguchi, T. Ono, S. Nasu, K. Miyake, K. Mibu, and T. Shinjo: *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 077205(2004).
- 3) E. B. Myers, D. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, R. A. Buhrman: *Science* **285**, 867(1999).
- 4) R. A. Webb, S. Washburn, C. P. Umbach, and R. B. Laibowitz, *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 2696 (1985).
- 5) S. Kasai, E. Saitoh, and H. Miyajima: *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 316(2002).
- 6) G. Tatara, H. Kohno, E. Bonet, and B. Barbara: *Phys. Rev. B* **69**, 054420(2004).
- 7) M. Kläui, C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, W. Wernsdorfer G. Faini, E. Cambril, L. J. Heyderman, F. Nolting, and U. Rüdiger: *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 106601(2005).
- 8) K. Sekiguchi, M. Nagura, and H. Miyajima: *J. Magn. Magn. Mat.*, (in print).
- 9) M. J. Donahue and D. G. Porter, <http://math.nist.gov/oommf/>.
- 10) T. Ono, Y. Sugita, and T. Shinjo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 3021(1996).
- 11) T. Ono, H. Miyajima, K. Shigeto, and T. Shinjo: *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 1116 (1998).

2006年10月 3日受理 2007年1月23日採録