

固体材料物性工学 第4回 2004.4.30

金曜2限(0511 講義室) 第4回磁気ヒステリシスはなぜ生じる?

佐藤勝昭教員(4号館514号室、内線7120、e-mail: satokats@cc.tuat.ac.jp)

[月曜振替日: 11/3 11/6(木)、10/10(学園祭片付け休講)、11/24 11/26(水)]

講義内容

- 復習コーナー; 強磁性はなぜ起きる-分子場理論
- 交換相互作用
- 磁気ヒステリシス
- 反磁界と静磁エネルギー
- 磁気異方性
- 磁区と磁壁; 磁壁移動と磁化回転
- 保磁力
- 発展コーナー: マイクロマグネティクス
- 実験コーナー: 磁区観察法

復習コーナー

ワイスの分子場理論

- 1つの磁気モーメントを取り出し、その周りにあるすべての磁気モーメントから生じた有効磁界によって、考えている磁気モーメントが常磁性的に分極するならば自己完結的に強磁性が説明できる
- これを分子場理論、有効磁界を分子磁界または分子場(molecular field)と呼ぶ。
- 磁化の温度変化曲線および常磁性領域でのキュリーワイスの法則が説明できる

交換相互作用(exchange interaction)

- 交換相互作用という言葉はもともとは多電子原子の中で働くクーロン相互作用の算出において、電子同士を区別できないことから来るエネルギーの補正項のことで、原子内交換相互作用といえます。(intra-atomic exchange interaction)
- この概念を原子間に拡張したのが、原子間交換相互作用(inter-atomic exchange interaction)です

原子内交換相互作用

- 原子内交換相互作用は、本質的にクーロン相互作用です。2つの電子(波動関数を ϕ_1, ϕ_2 とする)の間に働くクーロン相互作用のエネルギー H は、

$$H = K_{12} - (1/2) J_{12}(1+4s_1s_2) \text{ で表されます。}$$

- K_{12} は、次式で与えられるクーロン積分です。
- J_{12} は次式で与えられる交換積分で、電子が区別できないことからくる項です。

$$H = K_{12} - (1/2) J_{12}(1+4s_1s_2)$$

の固有値は、

$$= K_{12} - J_{12} \text{ (} s_1 \text{ と } s_2 \text{ が同符号のとき)}$$

$$= K_{12} \text{ (} s_1 \text{ と } s_2 \text{ が異符号のとき)}$$

- H と平均のエネルギー($H_0 = K_{12} - J_{12}/2$)との差 $-2J_{12}s_1s_2$ のことを原子内交換エネルギーという。

原子間交換相互作用

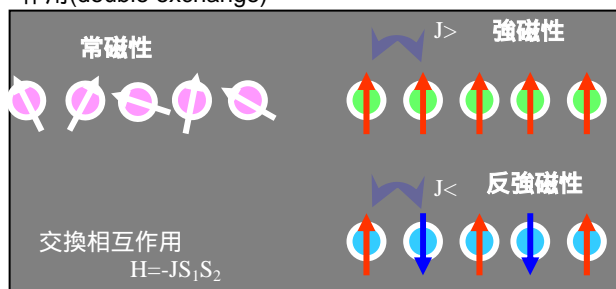
- 本来磁気秩序を考えるには物質系全体のスピンを考えねばならないのであるが、電子の軌道が原子に局在しているみなして電子のスピンを各原子 i の位置に局在した全スピン S_i で代表させて、原子1の全スピン S_1 と原子2の全スピン S_2 との間に原子間交換相互作用が働くと考えるのがハイゼンベルグ模型である。このとき交換エネルギー H_{ex} は、原子内交換相互作用を一般化して見かけの交換積分 J_{12} を用いて

$$\text{> } H_{ex} = -2J_{12}S_1S_2$$

で表される。 J が正であれば相互作用は強磁性的、負であれば反強磁性的である。

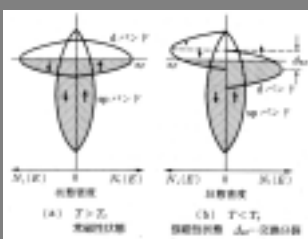
交換相互作用のいろいろ:

- ハイゼンベルグ模型 $H_{ex} = -2J_{12}S_1S_2$
- J が正であれば強磁性的、負であれば反強磁性的
- 交換積分の起源
 - 隣接原子のスピン間の直接交換(direct exchange)
 - 酸素などのアニオンのp電子軌道との混成を通してスピント同士がそろえあう超交換(superexchange)
 - 伝導電子との相互作用を通じてそろえあう間接交換(indirect exchange)
 - 電子の移動と磁性とが強く結びついている二重交換相互作用(double exchange)



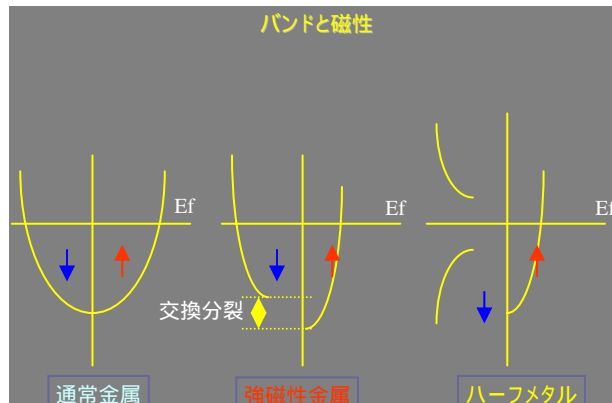
強磁性金属のバンド磁性

- 多数()スピンのバンドと少数()スピンのバンドが電子間の直接交換相互作用のために分裂し、熱平衡においてはフェルミエネルギーをそろえるため、スピンバンドからスピンバンドへと電子が移動し、両スピンバンドの占有数に差が生じて強磁性が生じる。
- 磁気モーメント M は、 $M = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow})\mu_B$ で表される。このため原子あたりの磁気モーメントは非整数とかる



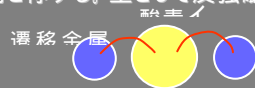
非磁性半導体との比較

バンドと磁性



超交換相互作用

酸化物磁性体では、局在電子系の磁気モーメントの間に働く相互作用は、遷移金属の3d電子どうしの重なりで生じるのではなく、配位子のp電子が遷移金属イオンの3d軌道に仮想的に遷移した中間状態を介して相互作用する。これを、超交換相互作用と称する。主として反強磁性的に働く。



間接交換(RKKY)相互作用

希土類金属の磁性は4f電子が担うが、伝導電子である5d電子が4f電子と原子内交換相互作用することによってスピン偏極を受け、これが隣接の希土類原子のf電子と相互作用するという形の間接的な交換相互作用を行っていると考えられている。これをRKKY (Rudermann, Kittel, Kasuya, Yoshida) 相互作用という。



二重交換相互作用

LaMnO₃では、すべてのMn原子は3価なので egバンドには1個の電子が存在し、この電子が隣接Mn原子のeg軌道に移動しようとする電子相関エネルギーUだけのエネルギーが必要であるため電子移動は起きずモット絶縁体となっている。LaをSrで置き換え4価のMnが生じると、Mn⁴⁺のe_g軌道は空であるから、他のMn³⁺から電子が移ることができ金属的な導電性を生じる。

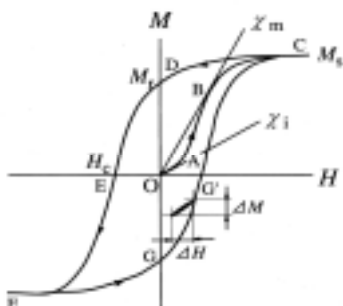
このとき隣接するMn原子の磁気モーメントのなす角 θ とすると、e_g電子の飛び移りの確率は $\cos(\theta/2)$ に比例する。 $\theta=0$ (スピンが平行)のとき飛び移りが最も起きやすく、運動エネルギーの分だけエネルギーが下がるので強磁性となる。

磁気ヒステリシスの由来

- 磁気ヒステリシスについて
- 反磁界と静磁エネルギー
- 磁気異方性
- 磁区と磁壁; 磁壁移動と磁化回転
- 保磁力

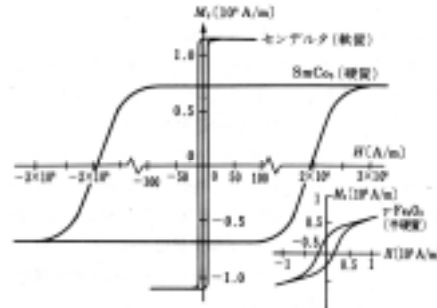
強磁性体の磁気ヒステリシス

- 磁化が外部磁界に対しヒステリシスを示す。



磁気ヒステリシスと応用

- 保磁力のちがいで用途が違う
- H_c 小: 軟質磁性体
- 磁気ヘッド、変圧器鉄心、磁気シールド
- H_c 中: 半硬質磁性体
- 磁気記録媒体
- H_c 大: 硬質磁性体
- 永久磁石



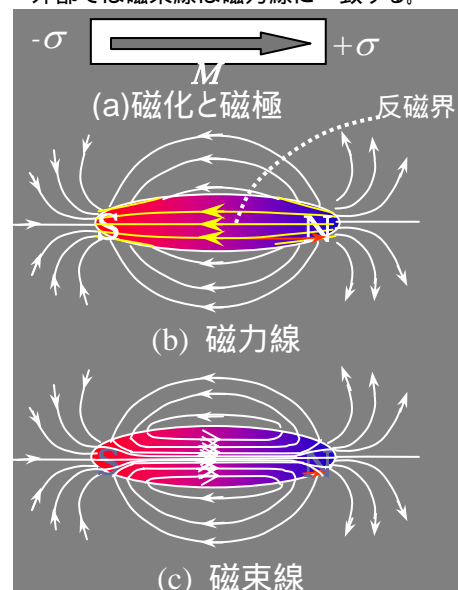
なぜ初磁化状態では磁化がないのか?

磁区 (magnetic domain)

- 磁化が特定の方向を向くとすると、N極からS極に向かって磁力線が生じます。この磁力線は考えている試料の外を通っているだけでなく、磁性体の内部も貫いています。この磁力線を反磁界といいます。反磁界の向きは、磁化の向きとは反対向きなので、磁化は回転する静磁力を受けて不安定となります。
- 磁化の方向が逆方向の縞状の磁区と呼ばれる領域に分かれるならば、反磁界がうち消し合って静磁エネルギーが低下して安定するのです

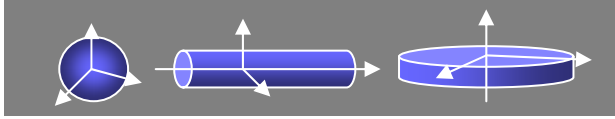
反磁界 (demagnetization field)

- 磁性体表面の法線方向の磁化成分を M_n とすると、表面には単位面積あたり $\sigma = M_n$ という大きさの磁極 (Wb/m^2) が生じる。
- 磁極からはガウスの定理によって全部 σ / μ_0 の磁力線がわき出す。このうち反磁界係数 N を使って定義される磁力線 NM は内部に向かっており、残りは外側に向かっていく。すなわち磁石の内部では、 M の向きとは逆方向の反磁界が存在する。
- 外部では磁束線は磁力線に一致する。



反磁界係数N: (近角強磁性体の物理より)

- Nのx, y, z成分を N_x, N_y, N_z とすると, $H_{di} = -N_i M_i / \mu_0$ ($i=x, y, z$)と表され, N_x, N_y, N_z の間には, $N_x + N_y + N_z = 1$ が成立する。
- 球形: $N_x = N_y = N_z = 1/3$
- z方向に無限に長い円柱: $N_x = N_y = 1/2, N_z = 0$
- 無限に広い薄膜の場合: $N_x = N_y = 0, N_z = 1$ となる。
- 実効磁界 $H_{eff} = H_{ex} - NM / \mu_0$



反磁界と静磁エネルギー

- 磁化Mが反磁界-Hdのもとにおかれると $U = M \cdot Hd$ だけポテンシャルエネルギーが高くなる。
- 一様な磁界H中の磁気モーメントMに働くトルクTは
 - ◇ $T = MH \sin \theta$
- 磁気モーメントのもつポテンシャルEは
- $U = \int T d\theta = -\int_0^\theta MH \sin \theta d\theta = MH (1 - \cos \theta)$
- エネルギーの原点はどこにとってもよいのでポテンシャルエネルギーは $U = -M \cdot H$ と表される。 $H = -Hd$ を代入すると反磁界によるポテンシャルの増加は $U = M \cdot Hd$

表面磁極の分割による静磁エネルギーの減少

- 結晶表面をxy面にとる
- 表面でz=0とする
- 磁区の磁化方向は $\pm z$
- 磁区のx方向の幅d
- 磁極の表面密度 ω
- $= \pm 2md < x < (2m+1)d$
- $= -\pm (2m+1)d < x < 2(m+1)d$
- 磁気ポテンシャル ϕ をLaplaceの方程式で求める

境界条件

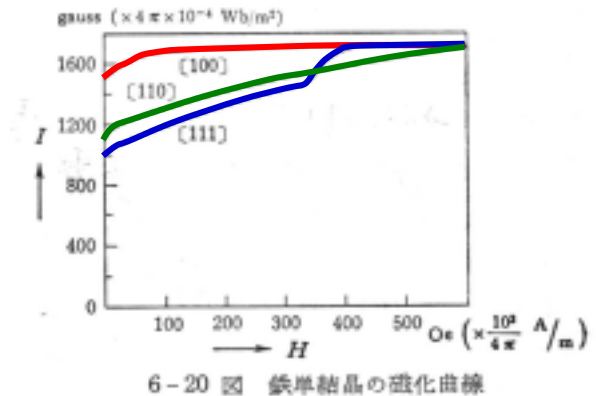
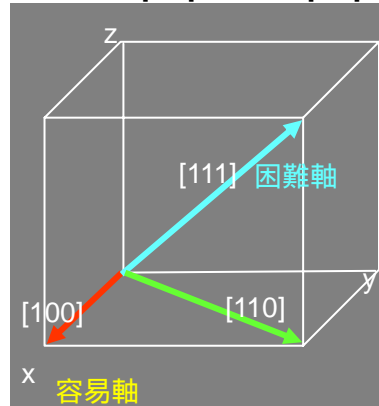
- $(\partial \phi / \partial z)_{z=0} = \omega / 2\mu_0$
- 境界条件のもとにラプラス方程式を解くと $\phi = \sum_n A_n \sin n(\pi/d)x \cdot \exp n(\pi/d)z$
- 係数 A_n は次式を満たすように決められる $(\pi/d) \sum_n n A_n \sin n(\pi/d)x = I / 2\mu_0; 2md < x < (2m+1)d$
 $= -I / 2\mu_0; (2m+1)d < x < 2(m+1)d$
- ◇ $A_n = 2I_s d / \pi^2 \mu_0 n^2$
- $\phi_{x=0} = (2I_s d / \pi^2 \mu_0) \sum_n (1/n^2) \sin n(\pi/d)x$
- 単位表面積あたりの静磁エネルギー $\epsilon = (2I_s^2 / \pi^2 \mu_0) \sum_n (1/n^2) \int_0^d \sin^2 n(\pi/d)x dx$
 $= (2I_s^2 d / \pi^2 \mu_0) \sum_{n=odd} (1/n^3) = 5.40 \times 10^4 I_s^2 d$

磁気異方性

- 磁性体は半導体と違って形状・寸法・結晶方位とか磁化の方位などによって物性が大きく変化する。
- 1つの原因は上に述べた反磁界係数で、形状磁気異方性と呼ばれます。反磁界によるエネルギーの損を最小化することが原因です。
- このほかの原因として重要なのが結晶磁気異方性です。結晶磁気異方性というのは、磁界を結晶のどの方位に加えるかで磁化曲線が変化する性質です。
- 電子軌道は結晶軸に結びついているので、磁氣的性質と電子軌道との結びつき(スピン軌道相互作用)を通じて、磁性が結晶軸と結びつきます。半導体にも、詳しい測定をすると異方性を見ることが出来ます。これに比べ一般に半導体の電子軌道は結晶全体に広がっているため、平均化されて結晶軸に依存する物性が見えにくいです。

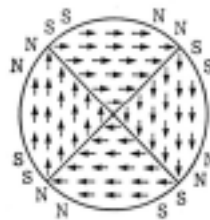
結晶磁気異方性

- 磁化しやすさは、結晶の方位に依存する。
- 鉄は立方晶であるが、[100]が容易軸、[111]は困難軸

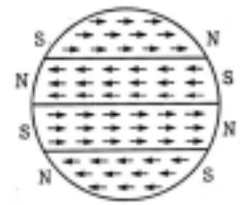


円板磁性体の磁区構造

- 全体が磁区に分かれることにより、全体の磁化がなくなっている。これが初磁化状態である。
- 磁区の内部では磁化は任意の方向をランダムに向いている訳ではない。
- 磁化は、結晶の方位と無関係な方向を向くことはできない。磁性体には磁気異方性という性質があり、磁化が特定の結晶軸方位(たとえばFeでは[001]方向および等価な方向)を向く性質がある。
- [001]容易軸では図のように(001)面内では[100][010] [-100][0-10]の4つの方向を向くので90°になる。
- [111]容易軸では180°磁壁になる。



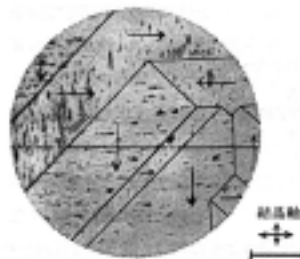
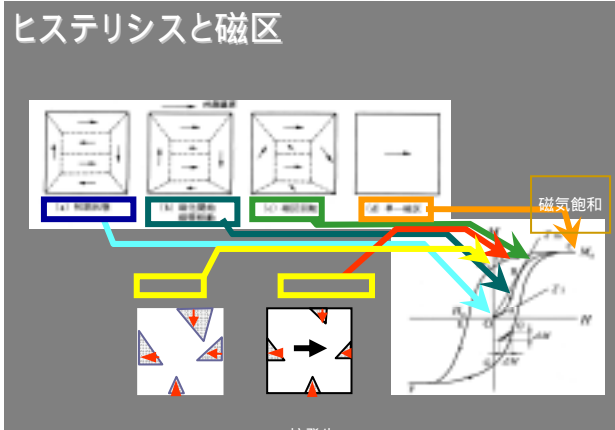
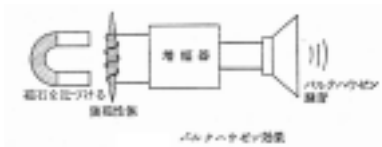
磁気異方性の大きい立方晶円板の磁区構造



磁気異方性の大きい一軸晶円板の磁区構造

磁区概念の歴史

- 磁区概念の考案: Weissが提唱
- P. Weiss: J. Phys. 6, 661 (1907)
- パルクハウゼンノイズ:
- 巨視的磁化が多くの細かい不連続磁化から成立
- H. Barkhausen: Phys. Z. 20, 401 (1919)



4% Si-Fe 単結晶 (001) 面で観察した磁区図形。磁壁の形態は影入れをしてある。中央に水平に入れた線は機械的にひいたすじの見え方を調べるためのもの。

(近角：強磁性体の物理)

180° 磁壁と90° 磁壁

磁壁と磁壁移動
ブロッホ磁壁とネール磁壁

磁化回転と保磁力

- 非可逆回転磁化過程
- $E = -K_u \cos 2(\theta - \theta_0) + I_s H \cos \theta$
- 釣り合いの条件および非可逆回転に移る条件
- $\frac{\partial E}{\partial \theta} = 0; \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} > 0$
- これらより、圧力 $p = I_s H c / K_u$ として
- $\sin 2(\theta - \theta_0) = p \sin \theta; \cos 2(\theta - \theta_0) = p \cos \theta$
- $\sin 2\theta_0 = (1/p^2)((4-p^2)/3)^{3/2}$
- $\theta_0 = 0, \pi/2$ のとき $p = 2 \quad Hc = 2K_u/I_s$
- $\theta_0 = \pi/4$ のとき $p = 1 \quad Hc = K_u/I_s$

磁壁移動と保磁力

- $\partial \epsilon / \partial s = p = 2I_s H c \cos \theta$
- 復元力が圧力と釣り合う
- $Hc = (\partial \epsilon / \partial s)_{\max} / 2I_s \cos \theta$
- 磁壁のエネルギー γ
- $\gamma = 2\{A(K_1 - (3/2)\lambda\sigma_0 \cos 2\pi(s/l))\}^{1/2}$
- $\partial \gamma / \partial s = 2\pi\lambda\sigma_0 \delta l$
- $Hc = \pi\lambda\sigma_0 / I_s \cos \theta$
- 普通の磁性体では $\lambda = 10^{-5}, I_s = 1-2[T], \cos \theta \sim 1, \sigma_0 = 10^9 [N/m^2]$ を代入して $Hc = 3 \times 10^4 [A/m]$

磁区観察法

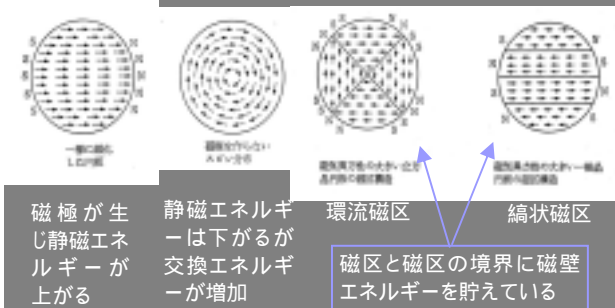
- 粉末図形法 (Bitter pattern)、電界研磨法
- 磁気カー効果顕微鏡
- 近接場磁気光学顕微鏡
- ローレンツ電子顕微鏡
- スピン偏極電子顕微鏡
- 干渉電子顕微鏡 (電子線ホログラフィー)
- X線磁気光学顕微鏡
- 磁気力顕微鏡 (MFM)
- スピン偏極走査型トンネル顕微鏡 (SP-STM)

ビッターパターン

マイクロマグネティクス micromagnetics

- 自発磁化をもつ強磁性体が有限な形状をもつときに、その内部のスピンド分布を第1原理から解く計算手法 [W.F. Brown, Jr.; J. Appl. Phys. 11, 160 (1940), Phys. Rev. 58, 736 (1940)]
- 安定なスピンド分布は、静磁エネルギー U_{mag} 、交換エネルギー U_{ex} 、磁気異方性エネルギー U_a 、磁気弾性エネルギー U_{el} の総和 $U = U_{\text{mag}} + U_{\text{ex}} + U_a + U_{\text{el}}$ を極小にすることによって与えられる。

マイクロマグネティクスによる磁区構造



(近角：強磁性体の物理)

磁区の寸法

- 磁区の単位表面積あたりの静磁エネルギー ϵ_m

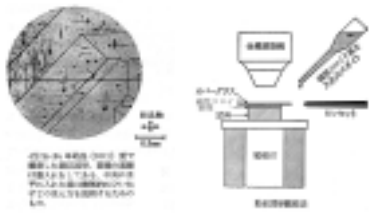
$$\epsilon_m = \frac{I_s^2 d}{\pi^2 \mu_0} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2 d} \int_0^d \sin n \left(\frac{\pi}{d} \right) x dx = 5.4 \times 10^4 I_s^2 d$$

- 磁壁のエネルギー ϵ_w

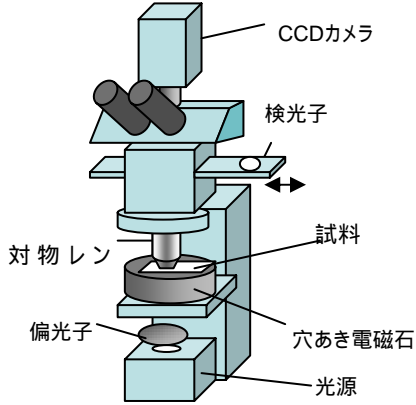
$$\epsilon_w = \frac{\gamma l}{d}$$

= $\epsilon_m + \epsilon_w$ を極小にする。

$$d = 3.04 \times 10^{-3} \sqrt{\frac{\gamma l}{I_s}}$$

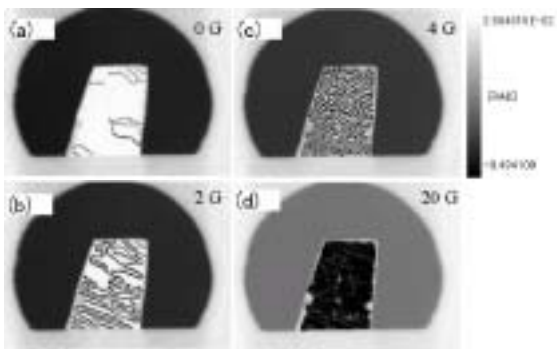


磁気カー効果顕微鏡



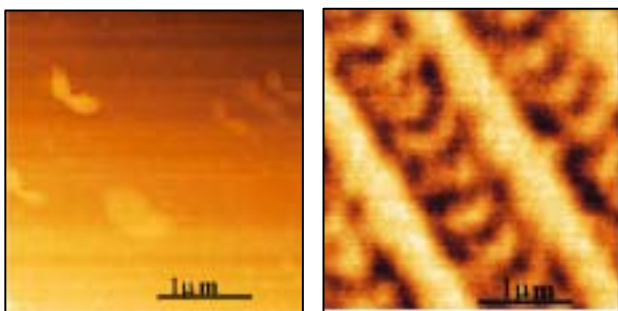
ファラデー効果を用いた磁区のイメージング

CCDカメラによる磁気光学イメージング



磁性ガーネットの磁区の変化

近接場磁気光学顕微鏡



近接場磁気光学顕微鏡によるP/Co MOディスクに記録された0.2μm マークのトポ像と磁気光学像

電子線ホログラフィ

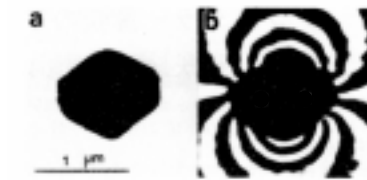


図2 パリウムフェライト単磁区粒子の干渉顕微鏡像

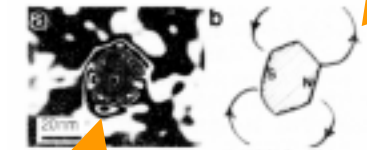


図3 10倍単磁区粒子の干渉顕微鏡像 (10倍)

Co単磁区粒子
X線磁気光学顕微鏡

パリウムフェライト単磁区粒子

