

佐藤勝昭 JSTさきがけ「次世代デバイス」研究総括 (東京農工大学名誉教授)

第10回スピントロニクス入門セミナー 2011.12.08

## 1. はじめに

- ・半導体の人は「磁性はわかりにくい」という。まず、基礎となる原子の磁気モーメント、原子間交換相互作用などの概念が難しい。それも、金属磁性体と絶縁性磁性体とで異なった電子状態を考える必要があり概念がつかみにくい。
- トスピンに依存するバンド構造、それにもとづくハーフメタルの概念や、スピンに依存するトンネル電気伝導、スピン注入磁化反転のように、難解な先端的な話題が多い。
- その一方では、強磁性体の特徴ともいえる磁気ヒステリシスや磁 区が、物質固有のものではなく形状、サイズ、構造に対する敏感 性をもち、ミクロな磁性では説明できず、巨視的な磁気モーメントの 運動を考えなければならないこと・・・等々、大学、特に工学部、の 学士課程では教えきれないくらい多岐にわたる物理現象が関連し ていることが、「わかりにくさ」の原因である。
- この解説では、細かい枝葉の厳密性には目をつぶって、磁性についてのおよその概念をつかんでいただくことをめざす。

## **2.**磁性の起源

バンドモデル(遍歴電子磁性)

▶ 遷移金属•合金

#### 局在モデル(局在電子磁性)

▶ 遷移金属酸化物

#### 共存モデル

- ▶ 希土類金属
- 希薄磁性半導体

- ▶ Ferroというのは「鉄の」という意味で鉄に代表されるよう な磁気的性質という意味である。
- 鉄に代表される性質とは、外部磁界を加えなくても磁化をもつ、即ち、自発磁化をもつことである。
- ▶ 強磁性体の例:
  - 遷移金属 Fe, Co, Ni,
  - 遷移金属合金:Fe<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>, Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>, Co<sub>1-x</sub>Cr<sub>x</sub>, Co<sub>1-x</sub>Pt<sub>x</sub>, Sm<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>
  - 金属間化合物: PtMnSb, MnBi, NdFe<sub>2</sub>B<sub>14</sub>
  - 酸化物・カルコゲナイド・ニクタイド、ハライド:
    - La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub>, CrO<sub>2</sub>, CdCr<sub>2</sub>S<sub>4</sub>, Cr<sub>3</sub>Te<sub>4</sub>, MnP, CrBr<sub>3</sub>

#### 2.1 バンドモデル

- 通常の磁性の教科書は、原子磁石から出発して常磁性 を説明し、原子間交換相互作用を用いて強磁性、反強磁 性などを説明し、分子場理論で磁化の温度変化、キュ リー温度などを説明する局在電子モデルに基づいており、 金属のバンドモデルにもとづく遍歴電子磁性に触れるの はその後になっている。
- 一方、半導体を学んできた研究者にとっては、バンドモデルを出発点にすることに慣れている。
- またスピンエレクトロニクスにおいては、スピン偏極バンド をベースに考えることが多い。
- ここでは、バンドモデルにもとづく金属磁性を出発点にとって、電子相関の強い極限として局在モデルを扱う。

#### スレーター・ポーリング曲線



## 鉄のバンド構造

- ▶ 磁性体といえば、だれもが鉄Feを思い浮かべる。Feは金属で ある。
- ・一般に金属であればエネルギーバンドモデルでは伝導帯の 電子状態の一部が占有され残りが空いているような電子構 造を持つはずである。
- ・鉄のバンド構造はどうなっているのだろうか?

## 通常金属と遷移金属の状態密度

(a)はアルカリ金属(Na,Kなど)のs電子に由来するバンド状態密度である。
(b)は、磁性をもたない遷移金属のバンド状態密度である。S電子帯に加えて、狭く状態密度の高いd電子帯が重畳している。



#### 常磁性金属と強磁性遷移金属



- 磁性がある場合のエネルギーバンドを考えるに当たっては、電子のスピンごとに バンドを考えなければならない。右側が上向きスピン、左側が下向きスピンを持 つ電子の状態密度である。
- 普通の非磁性金属では図(a)のように、左右対称となる。これに対し、強磁性体では、図(b)に示すように上向きスピンバンドと下向きスピンバンドとに分裂する。 分裂は、狭い3dバンドで大きく、広いspバンドでは小さい。この分裂を交換分裂という

強磁性金属のスピン偏極バンド構造



#### FeとNiの バンド 状態 密度



Feは↑スピンバンドに比し↓バンドの状 態密度がかなり小さい。n<sub>↑</sub>-n<sub>↓</sub>=2.2

 Niは↑スピンバンドは満ち、↓バンドには わずかな正孔しかない。n,-n」=0.6



↓バンドに0.6個の空 孔があると、Cu からs電子が流れ こみ、Cuが40% 合金したときモー メントを失う。



(a)通常の強磁性体金属はup spin, down spinとも金属 的

(b)Half metalではup spinは金属、down spinは半導

本

#### ハーフメタルとスピンエレクトロニクス

- たとえば、磁気トンネル接合(MTJ)素子のところで出てくるホイスラー合金Co2CrAlなどがその例
- 上向きスピンのバンドを見る限り金属のように伝導帯の 一部が占有された構造をとるのに対し、下向きスピンの バンドにおいては、半導体のように電子に占有された価 電子帯と電子に占有されない伝導帯がバンドギャップを 隔てて分かれており、フェルミ準位はバンドギャップの中 に存在する。
- このような構造をとると、フェルミ準位における電子状態は100%スピン偏極する。MTJにおいて磁気抵抗比はスピン偏極率の関数で与えられるので、ハーフメタルが注目される

## ハーフメタル: Co<sub>2</sub>MnGe



- ▶ ↑ スピンは金属、
- ▶ ↓スピンは半導体
- Geの一部をGalc置き換えるとスピン 偏極率が上がる



## バンドと電子相関

- 通常のバンド計算では、電子間の位置の相関を平均的なものに置き換える近似を行うので真の電子間相互作用は求まらない。
- バンドモデルが適用できるのは、金属磁性体に限られる。MnOや NiOのような絶縁性の磁性体を単純にバンド計算すると金属になってしまう。これは、電子相関が考慮されていないからである。
- ・電子相関とは、フントの規則のように電子同士のクーロン相互作用 がスピンに依存することから生じる。つまり、同じ向きのスピンをもつ 2つの電子は同じ軌道に入ることがないので重なりが小さくクーロン 相互作用も小さいが、逆向きスピンの2つの電子は同じ軌道を運動 できるのでクーロン相互作用が強くなって、エネルギー的に不安定 になるため、電子の移動を妨げる効果である。この2つの状態の間 のエネルギー差は電子相関エネルギーと呼ばれ、Uで表され、数eV のオーダーである。

2.2 ハバードモデル



#### 電荷移動型絶縁体



- 2.3 局在電子モデル
- 原子の位置に局在した多電子系では、通常フントの規則に従うように軌道角運動量とスピン角運動量が決められる。
- ▶ 3d遷移金属イオンでは、3d電子が配位子のp軌道と混成し、軌道角運動量はほぼ消失している。
- •4f希土類では、4f軌道は孤立原子内の状態とあまり変わらないので、全角運動量がよい量子数である。

# 局在電子系の磁性

- 常磁性体に誘起される平均の磁気モーメントは室温で B=100mTの磁界のもとでも10<sup>-2</sup>emu/cc程度の小さな量で ある。
- これに対して、強磁性体では、磁界を印加しなくても 10<sup>3</sup>emu/ccという大きな自発磁気モーメントを持っている。
- ワイスは、原子の磁気モーメントが周りの磁気モーメントからの場(分子場)を受けて整列しているというモデルを立てて、 強磁性体の自発磁化を説明した。

# 2.4 M-T曲線とキュリーワイス則の 分子場理論による説明

- 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。

周りからの磁場Heff=H+AMが働く



- 磁化Mをもつ磁性体に外部磁界Hが加わったときの有効磁界
   はH<sub>eff</sub>=H+AMと表される。Aを分子場係数と呼ぶ。
- > 分子場係数Aは $\mathcal{J}_{ex}$ を交換相互作用係数、zを配位数として  $A=2z\mathcal{J}_{ex}/N(g\mu_B)^2$ で与えられる。
- ・この磁界によって生じる常磁性磁化Mは、  $M=M_0B_J(g\mu_BH_{eff}J/kT)$ という式で表される。
  - ▶ M<sub>0</sub>=Ngµ<sub>B</sub>Jはすべての磁気モーメントが整列した ときに期待される磁化。

## 分子場理論 自発磁化が生じる条件を求める

- $H_{eff}=H+AM$ であるから、H=0のとき $H_{eff}=AM$  自発磁化が生じるには $H_{eff}=AM$ を $M=M_0B_J(g\mu_B H_{eff}J/kT)$ に代入して
- $M/M_0 = B_J(g\mu_B JH_{eff}/kT) = B_J(g\mu_B JAM/kT)$ が成立しなければならない。
- ▶ Aに分子場係数の式 $A=2z\mathcal{J}_{ex}/N(g\mu_B)^2$ を代入して  $M/M_0=B_J(2z\mathcal{J}_{ex}g\mu_BMJ/N(g\mu_B)^2kT)$
- ・ここで $M_0 = N_g \mu_B J$ を使って書き直すと  $M/M_0 = B_J((2z \mathcal{J}_{ex} J^2/kT) M/M_0)$ を得る。

 $M/M_0 = B_J((2zJ_{ex}J^2/kT) M/M_0)$ を解く

▶ y=M/M<sub>0</sub>、 x=(2zJ<sub>ex</sub>J<sup>2</sup>/kT) M/M<sub>0</sub>とすると、上の方程式を解く ことは、曲線y=B<sub>J</sub>(x)と直線 y=x /(2zJ<sub>ex</sub>J<sup>2</sup>/kT)を連立して解 くことと同じである。



## 分子場理論 キュリー温度

- ・温度が低いとき、直線の傾斜はゆるく、ブリルアン曲線と直線 ははy=M/M<sub>0</sub>=1付近で交わる。
- ▶ 温度が上昇するとyの小さいところ交わる。
- ▶ 高温になると、0以外に交点を持たなくなる
- ▶  $(2_{Z} \mathcal{I}_{ex} J^2 / kT) y = x$ の勾配と $y = B_J(x)$ の接線の勾配が等しいときが キュリー温度を与える。
- ▶ *x*=0付近では*y*~*x*/3であるから、3*y*=*x*と書ける。
- ・従って、Tcは $2_{z} \mathcal{J}_{ex} J^2/kTc=3$ によってきまる。即ち  $Tc=2z \mathcal{J}_{ex} J^2/3k$ となる。



 さまざまなJについて、 分子場理論で交点の M/M<sub>0</sub>をTに対してプロットすると磁化の温度変化を求めることができる。ニッケルの磁化温度曲線はJ=1/2でよく説明される。



×は鉄、●はニッケル、Oはコバルトの実測 値、実線はJとしてスピンS=1/2,1,∞をとったと きの計算値



キュリー温度Tc以上では、磁気モーメントはバラバラの方向を向き、常磁性になる。分子場理論によれば、このときの磁化率は次式で与えられる。



- この式をキュリーワイスの法則という。
- ▶ Cはワイス定数、Gpは常磁性キュリー温度という
- 1/χをTに対してプロットすると1/χ=(T- Θ<sub>p</sub>)/Cとなり、横 軸を横切る温度がΘ<sub>p</sub>である。

分子場理論

## キュリーワイスの法則を導く

- Heff=H+AM
- *M*/*Heff*=*C*/*T* (*M*と*Heff*の間にキュリーの法則が成立すると仮 定する)
- *M*/(*H*+AM)=C/T→MT=C(*H*+AM)
   従って、*M*(T-CA)=CHより

自発磁化の温度変化

- ・ 強磁性体の自発磁化の
   大きさは温度上昇ととも
   に減少し、キュリー温度
   Tcにおいて消滅する。
- Tc以上では常磁性である。常磁性磁化率の逆数は温度に比例し、ゼロに外挿するとキュリー温度が求まる。



## 金属磁性体での常磁性磁化率

- 金属常磁性体においてはパウリのスピン常磁性という温度に 依存しない弱い磁性が観測される。
- ▶ 金属強磁性体の常磁性相では、キュリーワイス的なχ-T曲線 が観測されることがおおい。
- 例えば、CoS<sub>2</sub>ではT\*以上でキュリーワイスになる。これは、 SCR理論によって説明されている。 SCR: self consistent renormalization



# 2.5 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います。(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

ウンチクコーナー

イントラ(intra)とインター(inter): イントラは内部のといういみの接頭辞、インターは複数のものの間のという意味の接頭辞です。イントラネット、インターネットということばもここから来ています

# 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<sub>1</sub>, φ<sub>2</sub>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<sub>12</sub>-(1/2) J<sub>12</sub>(1+4s<sub>1</sub>s<sub>2</sub>)で表されます。
 K<sub>12</sub>は、次式で与えられるクーロン積分です。

$$K_{12} = \int dr_1 dr_2 \varphi_1^*(r_1) \varphi_2^*(r_2) \left( -\frac{e^2}{r_{12}} \right) \varphi_1(r_1) \varphi_2(r_2)$$

J<sub>12</sub>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。

$$J_{12} = \int dr_1 dr_2 \varphi_1^*(r_1) \varphi_2^*(r_2) \left(-\frac{e^2}{r_{12}}\right) \varphi_1(r_2) \varphi_2(r_1)$$

# 原子内交換相互作用

 H=  $K_{12}$ -(1/2)  $J_{12}$ (1+4 $s_1s_2$ ) の固有値は、
 = $K_{12}$ - $J_{12}$  ( $s_1 \ge s_2$ が同符号のとき)
 K\_{12} ( $s_1 \ge s_2$ 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呼びます。



▶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Siで代表させて、原子1の全スピンS₁と原子2の 全スピンS₂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<sub>ex</sub>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<sub>12</sub>を用いて

 $H_{ex} = -2J_{12}S_1S_2$ 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:

- ▶ ハイゼンベルグ模型 *H<sub>ex</sub>* =-2*J*<sub>12</sub>S<sub>1</sub>S<sub>2</sub>
- 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
- 交換積分の起源
  - 降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)

# さまざまな交換相互作用

- ▶ 直接交換
- 超交換
- ▶ 間接交換(RKKY)
- ▶ 二重交換

## 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。


# 超交換相互作用模式図

90度:強磁性
 180度:反強磁性
 (Goodenough)



- ・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。
- ・伝導電子を介した局在スピン間の磁気的相互作用は、距離に対して余弦関数的に振動し、その周期は伝導電子のフェルミ波数で決められる。





$$H_{RKKY} = -9\pi \frac{J^2}{\varepsilon_F} \left(\frac{N_e}{N}\right)^2 f(2k_F R) S_1 \cdot S_2$$

$$f(x) = \frac{-x\cos x + \sin x}{x^4}$$
0
  
・ フリーデル振動

## Co/Cu人工格子におけるGMRのCu層厚依存性



 $\boxtimes 15$ 

----

## 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と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、Mn<sup>4+</sup>のe<sub>a</sub>軌道は 空であるから、他のMn<sup>3+</sup>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。電子の飛び移りの確率はcos(θ/2)に比例する。 θ=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。





# 3. 磁気ヒステリシス曲線と磁区

- 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

## 3.1 磁気ヒステリシス



#### [参考] 磁化曲線の測定法

磁性体を磁界中に置き、磁界を増加していくと、磁性体の磁化は増加していき、次第に飽和する。
 磁化曲線は磁力計を使って測定する。



#### VSM:試料振動型磁力計

試料を0.1~0.2mm程度のわずかな振幅 で80Hz程度の低周波で振動させ、試料の 磁化による磁束の時間変化を、電磁石の 磁極付近に置かれたサーチコイルに誘起 された誘導起電力として検出する。誘導起 電力は試料の磁化に比例するので、磁化 を測定することができる。

スピーカーと同じ振動機構

磁極付近に置いたサーチコイル

電磁石





# 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<sub>c</sub>小:軟質磁性体
  - 磁気ヘッド、変圧器鉄心、磁気 シールド
- ▶ H<sub>c</sub>中:半硬質磁性体
  - ▶ 磁気記録媒体
- ▶ H<sub>c</sub>大:硬質磁性体
  - ▶ 永久磁石



このループの面積が磁石に蓄積される磁気エネルギー 高周波の場合はヒステリシス損失となる。

#### 永久磁石の最大エネルギー積(BH)maxの変遷

(http://www.aacg.bham.ac.uk/magnetic\_materials/history.htm)



## 3.2 初期状態の磁化はなぜゼロか ー磁区を考えるー

- ・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)



- 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<sub>x</sub>= N<sub>y</sub>= 0、N<sub>z</sub>=1となる。
- ▶ 実効磁界 $H_{\text{eff}} = H_{\text{ex}} NM/\mu_0$





- Nのx, y, z成分をN<sub>x</sub>, N<sub>y</sub>, N<sub>z</sub>とする と、H<sub>di</sub>=-N<sub>i</sub>M<sub>i</sub>/µ<sub>0</sub> (i=x,y,z)と表さ れ、N<sub>x</sub>, N<sub>y</sub>, N<sub>z</sub>の間には、N<sub>x</sub>+ N<sub>y</sub>+N<sub>z</sub>=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 $H_{\text{eff}} = H_{\text{ex}} NM/\mu_0$



(近角強磁性体の物理より)

#### 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·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 sinθ

 磁気モーメントのもつポテンシャルEは *U=*∫*Tdθ= -*/<sub>0</sub><sup>θ</sup>*MH* sin*θ dθ=MH* (1-cos*θ*)
 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*・*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*•*H*d

# 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±z
- ▶磁区のx方向の幅d
- ▶磁極の表面密度ω =IS 2md<x<(2m+1)d =-IS (2m+1)d<x<2(m+1)d</p>
- 磁気ポテンシャルφを
   Laplaceの方程式で求める



# 境界条件 (∂φ/∂z)<sub>z=-0</sub>=ω/2µ<sub>0</sub> 境界条件のもとにラプラス方程式を解くと φ=Σ<sub>n</sub>A<sub>n</sub> sin n(π/d)x • exp n(π/d)z 係数A<sub>n</sub>は次式を満たすように決められる (π/d)Σ = 1/2 μ + 2 m d < x < (2m+1) d </li>

 $(\pi/d) \Sigma_n nA_n \sin n(\pi/d) x = I/2\mu_0; 2md < x < (2m+1)d$  $= -I/2\mu_0; (2m+1)d < x < 2(m+1)d$ 

 $\rightarrow A_n = 2I_s d/\pi^2 \mu_0 n^2$ 

- $\varphi_{(x=0)} = (2I_{s}d/\pi^{2}\mu_{0}) \Sigma_{n}(1/n^{2})\sin n(\pi/d)x$
- 単位表面積あたりの静磁エネルギー ε=(2I<sub>s</sub><sup>2</sup>/π<sup>2</sup>µ<sub>0</sub>) Σ<sub>n</sub>(1/n<sup>2</sup>)∫<sub>0</sub><sup>d</sup> sin n(π/d)x =(2I<sub>s</sub><sup>2</sup>d/π<sup>2</sup>µ<sub>0</sub>) Σ<sub>n=odd</sub>(1/n<sup>3</sup>)=5.40×10<sup>4</sup>I<sub>s</sub><sup>2</sup>d



- 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、磁気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くのです。半導体にも、詳しい測定をすると異方性を見ることができます。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ので、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°磁壁にな る。

▶ [111]容易軸では





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

(近角: 強磁性体の物理)

#### 3.3 磁化曲線を磁区で説明する



## 3.4 さまざまな磁区とマイクロマグネティクス



Figは Fig 21 さまざまな離区 して、 稿状磁区(surpe domain)と東元磁区(closure domain) を示している。磁性体を微細化して直径1µm付近になると、 スピンは面内に分布してvortex状態となり中心部に垂直方 向のスピン成分をもつようになる。さらに微細化すると単磁 区になる。 磁区の観察には、ビッター法といって、磁性微粒子を含むコロイドを 磁性体上に滴下して光学顕微鏡で観察する方法が古くから使われ ている。このほか磁気光学顕微鏡、ローレンツ電子顕微鏡、磁気力 顕微鏡、走査型ホール顕微鏡、走査型SQUID顕微鏡、スピン偏極 電子顕微鏡、X線MCD顕微鏡などで観察することが可能である。 Fig. 22には、いくつかの例について筆者のMFM観察結果を示す



Fig. 22 MFM で観察した微細ドットのスピン構造 (a) 縞状磁区(Co円形ドット 1.2μmφ)、(b) 環流磁区(パーマロイ正方 ドット 1.2μm)、(c) ボルテックス(パーマロイ円形ドット 300nmφ)、(d) 単磁区(Co円形ドット 100nmφ)

## LLG 方程式を用いた マイクロ磁気解析

Saturation magnetization (Ms)	800 emu/cm <sup>3</sup>
Exchange field (A)	$1 imes10^{-6}\mathrm{erg/cm^3}$
Anisotropic constant (Ku)	$1000 \text{ erg/cm}^3$
Gyro magnetic constant (y)	$-1.76 \times 10^7 \text{ rad/(s \cdot Oe)}$
Damping constant $(\alpha)$	0.2
Easy axis	Y direction
Dot Size	$\frac{200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 100}{\text{nm}}$
Number of dot	1
Mesh size	$10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$



$$H_y = 10 \text{ kOe} \rightarrow 0 \text{ Oe}$$











Magnetic moment - dv M

Force gradient...

## **Isolated square dot**





Spin structure



#### Calculation of a single dot

-divM

## Four-dot system



#### Force gradient image

#### Spin distribution image

## 4. 磁性と電気伝導

- ・ 強磁性金属の電気輸送現象の物理的起源
- 人工格子、多層膜、グラニュラー膜の巨大磁気抵抗効果 (GMR)
  - 巨大磁気抵抗効果研究の経緯と特性
  - ▶ GMRの起源
  - 振動的層間磁気結合の起源

- 4.1 強磁性金属の電気輸送現象の現象論
- ▶ 磁気抵抗効果(magnetoresistance):
  - ▶ 磁界の存在下での電気抵抗の変化する現象である。
  - ・非磁性の半導体や金属に見られる磁気抵抗効果は、ローレンツ カによる効果と、散乱の異方性から生じる。
  - 一方、強磁性体の場合、電気抵抗が磁化の方向に依存し、電流の方向が磁化と平行のとき垂直の場合に比べて若干抵抗が大きいという異方性磁気抵抗効果(AMR)が主として寄与する。

## 抵抗率テンソル

・一般に、導体中の電界成分 $E_i$ と電流密度 $J_j$ の間には、  $E_i = \sum \rho_{ij} J_j$ 

という関係が成立する。 $\rho_{ij}$ は抵抗率テンソルのij成分。

今、一様な粒径をもった多結晶体を考え、磁化がz方向に 飽和しているものとする。対称性の議論から、抵抗率テン ソルは次のように書ける。

$$\begin{bmatrix} \rho_{ij} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \rho_{\perp}(\boldsymbol{B}) & -\rho_{H}(\boldsymbol{B}) & 0\\ \rho_{H}(\boldsymbol{B}) & \rho_{\perp}(\boldsymbol{B}) & 0\\ 0 & 0 & \rho_{H}(\boldsymbol{B}) \end{bmatrix}$$

### 正常係数と異常係数

 抵抗率テンソルの*ij*成分r<sub>ij</sub>(**B**)は、磁束密度**B**の関数である。抵抗率テンソルの各成分は、次のようにBに依存しない 成分とBに依存する成分に分けて表せる。

 $\rho_{\perp}(\boldsymbol{E}) = \rho_{\perp} + \rho_{\perp}^{(o)}(\boldsymbol{B})$  $\rho_{\parallel}(\boldsymbol{E}) = \rho_{\parallel} + \rho_{\parallel}^{(0)}(\boldsymbol{B})$  $\rho_{H}(\boldsymbol{E}) = \rho_{H} + \rho_{H}^{(0)}(\boldsymbol{B})$ 

- ▶ 第1項は、磁化Mにのみ依存する項:異常係数
- ▶ 第2項は実効磁束密度Bに依存する項で:正常係数 ρ<sub>//</sub>は、電流が磁化に平行である場合の抵抗率のB→0外挿値 ρ<sub>⊥</sub>は、電流が磁化に垂直である場合の抵抗率のB→0外挿値 ρ<sub>H</sub>は異常ホール抵抗率である。

異方性磁気抵抗(AMR)

▶ 抵抗率テンソルの対角要素ρ<sub>//</sub>とρ」とは一般に異なっているが、 これは、抵抗が磁化Mと電流Jの相対的な向きに依存している ことを示している。そこで、図に示すような配置を考え、MとJの なす角度をθとすると、

$$\lim_{B \to 0} \rho = \frac{\rho_{//} + 2\rho_{\perp}}{3} + \left(\cos^2 \theta - \frac{1}{3}\right)(\rho_{//} - \rho_{\perp})$$

が得られる。磁気抵抗比は次式のように定義される。



### 異常ホール効果

非対角成分<sub>PH</sub>は、図の配置においてMおよびJに直交する方向に
 異常ホール電圧E<sub>H</sub>
 E<sub>µ</sub>(B=0)= ρ<sub>µ</sub>α×J

をもたらす。

▶ 正常ホール係数 とのアナロジーから、異常ホール係数は

$$R_{S} = \frac{\rho_{H}}{\mu_{0}M} \quad [SI], \quad R_{S} = \frac{\rho_{H}}{4\pi M} \quad [cgs]$$

のように定義される。

図は典型的な異常ホール効果の 磁界依存性である。磁気飽和後 のホール抵抗の磁界依存性は正常ホー



### 4.2 強磁性金属の電気輸送現象の物理的起源 スピン散乱と2 流体モデル

#### 

 Kasuyaらのスピン散乱(spin disorder scattering) 伝導電子と局在磁気モーメントとのsd交換相互作用による散乱 を考える。局在d電子系のスピンがそろっていると散乱は生じな いが、スピンに揺らぎが起きると散乱が強くなる。希土類など局 在性の強い系ではこのモデルでよく説明される。 Mottによる2流体電流モデル(two current model) スピン依存の散乱ポテンシャルを考え、電流は↑スピンと↓スピ ンの伝導電子によってそれぞれ独立に運ばれると考える。散乱 によってs電子がd電子帯に遷移するが、↑スピンd電子帯と↓ スピンd電子帯では空のDOSが異なるため、s電子はスピンの 向きに応じて異なった散乱確率を感じることになる。
#### 2流体モデルによる異方性磁気抵抗

↑ スピンに対する抵抗率をρ↑、↓スピンに対する抵抗率をρ↓と すると全体の抵抗率ρは並列抵抗の式によって次式で表される。

$$\rho = \frac{\rho_{\uparrow} \rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}$$

- 単純な2流体モデルを考え、スピン軌道相互作用を用いて、抵抗率が磁化の方向と電流方向のなす角度に依存する異方性磁気抵抗効果を説明することが行われている。
- これによれば、異方性磁気抵抗比は

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = \frac{\rho_{//} - \rho_{\perp}}{\rho} \approx \gamma \left(\frac{\rho_{\uparrow}}{\rho_{\downarrow}} - 1\right)$$

ここに yはスピン軌道相互作用係数である。単純遷移金属、遷移 金属合金における実験結果の多くは上式で説明できる。

### 異常ホール効果のメカニズム

- ・異常ホール効果のメカニズムについては、Luttinger以 来多くの研究があり、スピン軌道相互作用による(a)ス キュー散乱と(b)サイドジャンプが原因であるとされる。
- ▶ 両散乱における電子の軌跡を図(a)(b)に示す。
- (a)ではρ<sub>H</sub>はρ(T)に比例して温度変化するが、(b)では ρ(T)<sup>2</sup>に比例する。
- Feなどの実験では、低温 部を除き<sub>PH</sub>は<sub>p</sub>(T)<sup>2</sup>に比 例するので、サイドジャンプ が主原因と考えられる。



### 4.3 人工格子、多層膜、グラニュラー膜の 巨大磁気抵抗効果(GMR)

- 巨大磁気抵抗効果研究の経緯と特性
- ▶ GMRの起源
- 振動的層間磁気結合の起源

## a. 巨大磁気抵抗効果研究の経緯と特性

▶ Fertらのグループは、Fe/Crな ど磁性金属/非磁性金属の人 工格子において、大きな磁気 抵抗比をもつ磁気抵抗効果を Fe30Å/Cr18Å)30 発見した。図は、彼らが報告す る磁化と磁気抵抗効果の対応 Fe30Å/Cr12Å),, 0.7を示している  $H_{s}$ 0.64 低温で50%におよぶ大きな磁気抵 Fe30Å/Cr9Å)... 抗比R(H)/R(H=0)が見られてい 0.5 -

る。室温でも16%におよび、巨大磁 -40 -30 -20 -10 0 10 20 30 40 気抵抗効果(GMR)と名付けた。

### AMRとGMRの違い

- GMRが前節で述べた異方性磁気抵抗効果(AMR)と異なる 点は、
- ▶ (1)磁気抵抗比が桁違いに大きい
- ▶ (2)抵抗測定時の電流と磁界の相対角度に依存しない
- ▶ (3)抵抗は常に磁界とともに減少する

という3点である。このような点は、スピン軌道相互作用では説明できない。

Grünbergらは、GMRが発見される以前からFe/Cr/Fe の3層膜の研究を行い、1986年にCrを介して2つのFe 層間に反強磁性結合が存在することを見いだしていたが、 その際、磁化が平行と反平行では電気抵抗に差がある ことも報告している。すなわち、層間に反強磁性的結合 がある場合に、飽和磁界が大きくなるとともに磁気抵抗 効果が大きくなることを指摘していた。

P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky and H. Sower: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 2442.

# Fe/Cr人工格子のMR比のCr厚依存性

- 1991年になってParkinら は、図に示すようにFe/Cr における層間相互作用の 大きさがCr層の厚みに対 し振動的に変化することを 見いだした。
- S.S.P. Parkin, Z.G. Li, and D.J.
   Smith: Appl. Phys. Lett. 58 (1991) 2472.



### Co/Cu人工格子におけるMR比のCu層厚依存性

- MR比の非磁性層厚 依存振動はCo/Cu 人工格子など磁性 / 非磁性金属人工 格子に一般に見られ ている。
- D.H. Mosca, F. Petroff,
   A, Fert, P.A. Schroeder,
   W.P. Platt and R. Loloee,
   JMMM 94, L1 (1991)



# b. 2流体電流モデルによるGMRの説明

F2

- 強磁性に結合した系では↑スピン電子は
   系の中を散乱を受けることなく通過できるが、↓スピン電子は強い散乱を受け、平均自由行程は短く抵抗も高い。しかし、↑
   電子の電流経路と並列結合になっているので、全体としては低抵抗。
- ▶ 反強磁性に結合した系では、↑ 電子の経路も↓ 電子の経路も、弱い散乱と強い散乱を交互に受けるので、全体の抵抗は高くなる。強い散乱により平均自由行程が層厚より短くなればGMRは生じない。

### バンドモデルによるGMRの説明

・ 強磁性状態では、多数スピンバンド と少数スピンバンドは交換分裂して おり、フェルミ準位は少数スピン帯 の中に存在する。



FM coupling

AF coupling

▶ 移動に当たってスピンが保存されるものとする。F1の少数スピン(↓)電子が非磁性金属Mの少数スピン帯に移動し、非磁性金属はスピン偏極を受ける。この↓電子がF2に移るとき、もし、その磁化がF1と平行であれば、↓電子は散乱を受けないで、F2の少数スピンバンドの空席に飛び移れるが、反平行であれば、↓電子のバンドが多数スピンバンドとなるため空席がなく、飛び移ることができない。

## c. 振動的層間磁気結合の起源

- ▶ 層間結合の振動構造の機構については大きく見て2つの考 え方がある。
  - ▶ RKKY相互作用に起源を求めるもの。
  - ▶ 量子井戸に基づくモデル。
- おそらく、同じ物理現象を異なる断面から見ているものと考えられるので、今後の理論的考察を待ちたい。



- Fe/Cr/Feサンドウィッチ膜を作り、磁気光学効果を用いて層間交換相互作用の大きさのCr層厚依存性を 精密に測定した。この結果層間相互作用の振動には約1.8nmの長周期振動と周期約0.3nmの短周期振動が重なっていることがわかった。
  - S. Demokritov, J.A. Wolf and P. Grünberg: Europhys. Lett. 15, 881 (1991)
- ・振動周期は、Brunoによれば非磁性金属のフェルミ 面における停留ベクトル(フェルミ面上の2点間距離 が極値をとるような2点を結ぶ波数ベクトル)から決められる。この停留波数ベクトルをQsとすると、振動周 期ΛはΛ=2π/Qsで与えられる。実際、図に示される Cuのフェルミ面における2つの停留ベクトルは、実験 で見られた2つの振動周期を説明している。
  - P. Bruno and Chappart: Phys. Rev. Lett. 67, 1602 (1991)



Cuの電子フェルミ面と 2つの停留ベクトル

### 量子閉じ込めモデル

- ・ 非磁性金属の伝導電子が磁性金属との界面で反射され干渉することによって定在波を作って閉じこめられるとする量子井戸状態を考える。金属薄膜内に電子波が閉じこめられる現象は以前から知られていたが、HimpselのグループはCo(100)上に成膜したCu超薄膜に閉じこめられた量子状態を逆光電子分光により見いだし、フェルミ準位における状態密度が、GMR同様の振動構造を持つことを明らかにした。
- 量子閉じこめはとびとびのエネルギー準位を作り、そのエネルギーは 磁性層間の距離によって変化するが、そのエネルギー準位の位置に よって、磁化が磁性層間で平行、反平行のどちらがエネルギーが低い かが決まる。
  - J.E.Ortega, F.J.Himpsel, G.J. Mankey and R.F.Willis: Phys. Rev. B47, 1540 (1993).

### Cu/Coにおける量子井戸



Spacer

(compare figures 29 and 32) (Ortega et al. 1993a, Segovia et al. 1996).

### 5. おわりに

- 磁性特有のテクニカルタームがあるが、慣れればそれほど難しいものではない。
- 大部分の話は、量子力学なしでも理解できる。電磁気学の知識があればよい。
- 応用につながるのは、磁区、磁壁の物理である。
- >メゾスコピック系では、量子的な現象が現れる。これが、得意なスピン依存伝導現象をもたらす。

参考書

- 中村 伝:「磁性」、槙書店(1965)
- 金森順次郎:「新物理学シリーズ 磁性」、培風館(1969)
- 芳田 奎:「物性物理学シリーズ 磁性I,II」、朝倉書店(1972)
- 太田恵造:「磁気工学の基礎I,II」、共立全書(1973)
- 近角聡信編:「磁性体ハンドブック」、朝倉書店(1975)
- 近角聡信:「強磁性体の物理(上・下)」、裳華房(1977, 1984)
- 芳田 奎:「磁性」、岩波書店(1991)
- 高梨弘毅:「初等磁気工学講座」、日本応用磁気学会(1996)
- 川西健次郎編:「磁気工学ハンドブック」、朝倉書店(1999)
- 小林久理眞:「したしむ磁性」(朝倉書店, 1999)
- 近桂一郎、安岡弘志編:「実験物理学講座6 磁気測定I」、丸善(2000)