

2・1 ナノ構造磁性体の機能性

東京農工大学／科学技術振興機構
佐藤勝昭

2・1 ナノ構造磁性体の機能性

本章では、磁性体およびスピンのナノ構造という舞台に立ったときにどのような機能性を発現するかについて論じる。この2・1節では、これに続く節に述べる機能性発現のもとになるナノスケールにおけるスピンの物理を概説する。2・2節では、サブミクロンの規則構造においてその周期が光の波長と同程度になることにより生じる光学現象にもとづくフォトリックバンドギャップ、スーパープリズム現象などについて述べ、その応用を紹介する。2・3節では、ナノグラニューラー構造のもつ高抵抗・高異方性磁界という性質に基づいた高周波応用に焦点を当てる。2・4節では、スピンエレクトロニクスの観点から、磁性スピンとキャリアとの相互作用がナノ領域においてどのように特徴付けられ、機能性を発揮するのかについて述べ、この目的に適した新規材料開発・設計の指針について論じる。

2・1・1 物理現象に特有な特性長と機能

微細化のさまざまな効果は、微細構造のサイズがその効果に対応する特性長 (characteristic length) と比較して小さいときに出現する。特性長としては、物質中の電磁波の波長、スピン拡散長、磁気ポーラロンの直径、励起子の軌道直径、キャリアの平均自由行程、超伝導のコヒーレント長、層間相互作用の振動周期、トンネル絶縁層におけるスピン保持膜厚、磁壁のサイズなどさまざまなものが考えられる。高周波用途のソフト磁性材料においては、ある特性長以下の微粒子サイズになると粒径が小さいほど透磁率の向上が見られる。

これらの特性長と微細構造のサイズの相互作用は、閉じこめ効果、近接効果、規則構造、不規則性などによって影響を受けるとされる¹。

磁性現象における特性長

(1) 低周波における磁気現象と特性長

直流～低周波における磁性現象に限ってみれば、宮島が磁気エネルギーの各項をスチフネス定数Aで規格化した式から導入した特性長がある²。磁気的全エネルギーは、交換エネルギー E_{ex} 、磁気異方性エネルギー E_{anis} 、静磁エネルギー E_d 、外部磁界によるゼーマンエネルギー E_h からなり、

$$\begin{aligned}
E &= E_{ex} + E_{anis} + E_d + E_h \\
&= \int \left[A(\nabla \mathbf{m})^2 + \mathbf{K} \cdot \mathbf{f}(\mathbf{m}) + \frac{1}{2\mu_0} M_s^2 \mathbf{m} \cdot \mathbf{h}_D - M_s H_{ex} \mathbf{m} \cdot \mathbf{h}_{ex} \right] dV \quad (2.1) \\
&= \int \left[A(\nabla \mathbf{m})^2 + \mathbf{K} \cdot \mathbf{f}(\mathbf{m}) - \frac{N}{2\mu_0} M_s^2 m^2 - \frac{1}{2} M_s H_{ex} \mathbf{m} \cdot \mathbf{h}_{ex} \right] dV
\end{aligned}$$

と表される。ここで、 \mathbf{m} は磁化 \mathbf{M} の方位を表す単位ベクトルで、 M_s は磁化の大きさ、 A は交換スチフネス定数、 \mathbf{h}_D は反磁界、 \mathbf{h}_{ext} は外部磁界の方位単位ベクトルをあらわす。また、 \mathbf{K} は磁気異方性定数をベクトル化したもの、 $\mathbf{f}(\mathbf{m}) = \mathbf{f}(\theta, \varphi)$ は球面調和関数をベクトル化した関数である。

上の式を交換スチフネス定数 A でくくって積分の外に出すと、

$$E = A \int \left[(\nabla \mathbf{m})^2 + \frac{\mathbf{K}}{A} \cdot \mathbf{f}(\mathbf{m}) + \frac{NM_s^2}{2\mu_0 A} m^2 - \frac{M_s H_{ext} \mathbf{h}_{ext}}{2A} \mathbf{m} \right] \quad (2.2)$$

と書けるが、積分の中の各項の次元を調べると、第 1 項の $(\nabla \mathbf{m})^2$ の次元は $[\text{m}^{-2}]$ 、 $\mathbf{f}(\mathbf{m})$ 、 m は無次元なので、 \mathbf{K}/A 、 $NM_s^2/2\mu_0$ などの係数は、 $[\text{m}^{-2}]$ の次元をもつ。

そこで次のように 3 つの特性長を定義する。

$$\begin{aligned}
\xi_K &= \sqrt{\frac{A}{K}} \\
\xi_N &= \sqrt{\frac{2\mu_0 A}{NM_s^2}} \\
\xi_H &= \sqrt{\frac{A}{M_s H_{ext}}}
\end{aligned} \quad (2.3)$$

ξ_K は異方性特性長で Bloch 磁壁の幅に相当する。Fe においては、 $A=8 \times 10^{-12}$ J/m、 $K=5 \times 10^5$ J/m³ であるから $\xi_K=4$ nm となる。 ξ_N は静磁特性長で、これ以下でボルテックスになる半径に対応する。球形の Fe においては、 $A=8 \times 10^{-12}$ J/m、 $M_s=2.15$ T、反磁場係数 $N=1/3$ を代入すると $\xi_N=3.6$ nm 程度となり、鉄微粒子が単磁区構造をとる臨界直径 4 nm とほぼ一致する。また、Nèel 磁壁における Bloch line のサイズがこれに相当する。 ξ_H は強磁性共鳴の波長に相当する。 $H_{ext}=8 \times 10^4$ A/m のとき、 $\xi_H=6.8$ nm となる。

メゾスコピック構造のサイズ l が静磁特性長 ξ_N より小さいとボルテックスになり、磁壁のサイズ ξ_K より小さいと単磁区になる。さらに小さくなって磁性粒子のもつ磁気異方性エネルギーが熱エネルギーよりも小さいと、超常磁性にな

る。これについては、2.1.2 超常磁性の項で説明する。

図1は、実際に作製した磁性ドットのスピンの構造を示しており、(物質が違うので、直接比較はできないが)直径100nmのドット(Co; FIB加工)は単磁区構造を示すのに対し、直径300nmのドット(パーマロイ; ダマシン法埋め込み)は、ボルテックスになり、さらに1200nmの正方形ドット(パーマロイ; ダマシン法埋め込み)で90度磁壁の環流磁区構造、直径1000nmの円形ドット(パーマロイ; FIB加工)で縞状磁区になることが示されている。

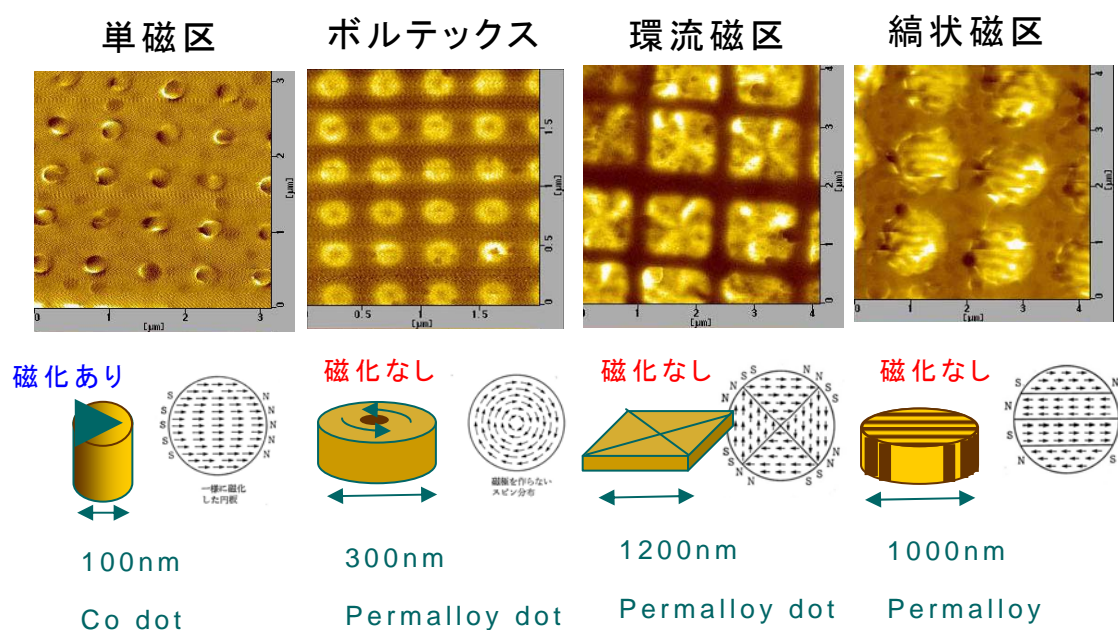


図1 磁性体のサイズとスピン構造

磁性に関するその他の特性長としては、磁歪の自己エネルギーが重要なサイズがある。試料の厚さが特性長 $\sqrt{AK_u/C\lambda^2}$ (C は剪断弾性係数、 λ は磁歪の大きさ)より小さくなると、磁壁のエネルギーが優勢となって、磁区パターンが起きやすいが、逆にこの特性長を超えると弾性力を打ち消して無応力になるように磁区が形成される。

(2) 高周波用途のソフト磁気特性における特性長

多数の微結晶粒からなるソフト磁性体の高周波特性においては、第4章4.1.2節の図4に示すように、粒径 D の特性長 D_c が100nm付近にあり、 D が D_c より大きい通常の軟磁性体の場合は、 D の減少とともに初透磁率 μ_i が減少し、保磁

力 H_c も増大してソフト磁性が劣化するが、 D が D_c より小さいナノ結晶ソフト磁性材料になると、逆に D を減少するとともに μ_i が増大し、 H_c も減少し、ソフト磁性が向上することが知られている^{3,4}。結晶磁気異方性がある程度大きな結晶材料でも、結晶粒がナノスケールまで微細化されると、実効的に磁気異方性が減少し、 H_c は D の減少とともにほぼ D^6 に比例し減少、 μ_i はほぼ D^{-6} に比例し増加する。Herzerは、このような振舞いをランダム異方性モデルによって説明した。これによると交換結合したランダム配向のナノ結晶組織では、結晶磁気異方性が平均化されてゼロに近づくために、 H_c が減少するとしている。従って、アモルファス合金の結晶化作用を利用すればソフト磁気特性が優れたナノ結晶軟磁性材料を得ることができる。詳細は、第4章を参照されたい。

このほか、高周波用途の場合の特性長としては、表皮深さ(skin depth)がある。試料の厚さ t が、表皮深さ $\delta=(2\rho/\omega\mu_0)^{1/2}$ より薄いと電磁波は試料内に均一に侵入するが、厚いと部分的にしか侵入することができない。 δ は ω が低いほど、 ρ が高いほど長い。金属の連続膜に比べ絶縁体に金属磁性微粒子を埋め込んだナノ複合材料のように抵抗率が十分高い場合には表皮深さも長くなり、高周波用途に適していることがわかる。

光から見た特性長

金属磁性体・非磁性体積層構造について磁氣的性質を磁気光学効果という観点からみると、次のような特性長が浮かび上がってくる。まず、非固溶系においては、変調周期が**物質中の光の波長**程度であると、フォトリックバンドギャップなど光学的な多重干渉効果を考える必要があること、**界面の構造的乱れの寸法**程度になると、理想的な急峻な界面を仮定した取り扱いができなくなること、**電子のドブロイ波長**程度になると、量子閉じ込め効果が重要になること、さらに**原子の寸法の程度**になると、新たなバンド構造が現れ、新しい物質として考える必要があることがわかっている⁵。

・フォトリック結晶

屈折率を光の波長程度の周期で1次元に変調した積層構造はファブリペロー共振器に相当し、光の伝搬が禁止されるフォトリックバンドギャップが生じる。この積層構造において、1箇所、周期を乱す「不純物」を挿入すると、光の強

度はその不純物付近に局在化し、光を透過するギャップ内状態を作る。この不純物として磁気光学材料を用いれば、特定の波長において磁気光学効果がエンハンスされる。このことについては、2.2節にその原理と応用を紹介するので、ここでは、触れない。

・ナノ構造におけるサイズ効果

ナノ構造における状態は、固体バルクと単一分子の中間の状態をとる。このため、その構造がもつ物理的・化学的性質は、構造の寸法を短くしていくにつれてバルク的な性質から分子的な性質へ徐々に変化していく。変化のようすは2つに大別できる。

1つは、構造体の要素が小さくなると表面・界面の体積に対する比率が増加し、表面・界面に原子の数は、構造体要素の内部の原子の数と同程度またはそれ以上になる。このため、表面状態・界面状態の寄与が内部に比べ無視できなくなる。ナノ微結晶の表面の電子状態は結合が飽和していないため反応性が強く、触媒作用などに寄与する。もう一つは、完全に電子的な効果で、バルクではバンドを形成していた電子波動関数がナノ構造（2次元：量子井戸、1次元：量子細線、0次元：量子ドット）の井戸型ポテンシャル中に閉じこめられ、離散的なエネルギー準位をとる。この結果、半導体のナノ粒子では、サイズが10 nm以下になると、価電子帯から生じた量子準位と伝導帯から生じた量子準位との間のエネルギーギャップがバルクのバンドギャップより高エネルギー側に生じ、サイズの現象とともにより高エネルギー側にシフトする。

金属においても、電子波はナノ構造に閉じこめられ、離散的な状態をもたらす。離散準位間の光学遷移が光スペクトルに現れることがある。磁性金属と非磁性金属の接合においては、多数スピンバンドと少数スピンバンドの量子準位の連続性が異なることによって、磁気光学スペクトルに異常がおきる。

図2は、Auのエピタキシャル膜の上に堆積したFe超薄膜の磁気光学スペクトル（最表面はAu超薄膜のキャップ層で覆われている）である⁶。このような系の磁気光学効果は、下地層（Au）の誘電率テンソルの対角成分を ϵ_{xx}^S 、Fe層の誘電率テンソルの非対角成分を ϵ_{xy} として、 d が十分小さいとき

$$\theta_K + i\eta_K = \frac{2d\omega}{c} \cdot \frac{i\epsilon_{xy}}{1 - \epsilon_{xy}^S} \quad (2.4)$$

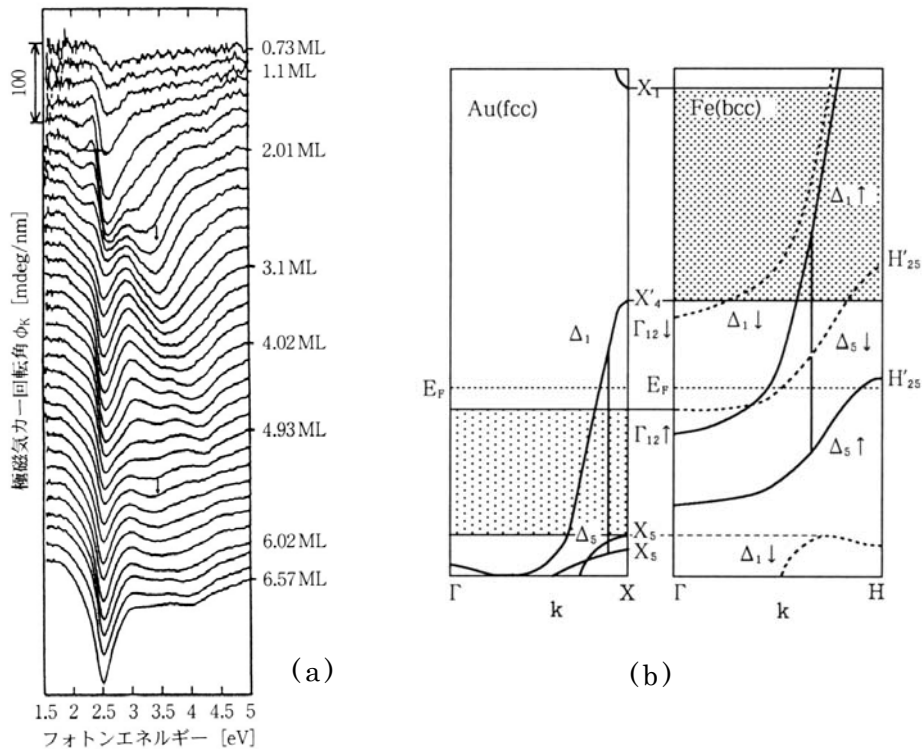


図 2 (a) Au のエピタキシャル膜の上に堆積した Fe 超薄膜（最表面は Au 超薄膜のキャップ層で覆われている）の磁気光学スペクトル
 (b) Fe と Au の接合におけるバンド構造

で表される。下地層 (Au) のプラズマ共鳴の周波数でこの式の分母が小さくなるため、磁気光学スペクトルに構造が現れる。さらに 3.5~4.5 eV にかけて、バルクの Fe には観測されないようなピークが現れ、層厚が大きくなるに従って高エネルギー側にシフトする。Fe と Au の接合における電子構造を図 2 (b) に示す。Fe の空いた多数スピンバンドの電子のエネルギーは、Au のバンドギャップに相当するため中には入り込めず、接合で電子波は反射され Fe 層内に定在波を作って閉じこめを受ける。これによって量子井戸準位が生じ新たな光学遷移を生じたものと解釈されている。同様の閉じこめ現象が Fe に挟まれた Au 超薄膜にも現れる⁷。

図 3 は、原子層レベルで精密に積層された Fe/Au 人工規則格子の磁気光学スペクトルが層厚とともにどのように変化するかを示している⁸。図 3 (b) は構成層が厚い場合で、 $n=10$ および 15 のときは、単純に鉄と金との積層膜と考えら

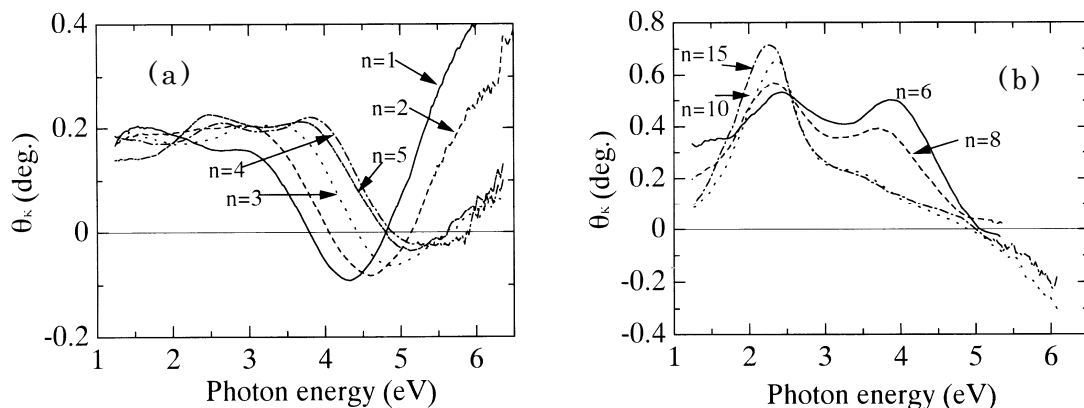


図3 Fe(n ML)/Au(n ML)人工格子の磁気カー回転スペクトル (a) n が小さい場合、(b) n が大きい場合

れ、2eV付近にAuのプラズマ端でのエンハンスメントが明瞭に見えているが、 n が小さくなり $n=8$ になると、新たな構造が4eV付近に現れ、さらに n が小さくなると図3(a)のようにプラズマエンハンスメントはほとんど見られず、Fe/Au人工格子に由来する4-6eVの新たなバンド間遷移が磁気光学スペクトルを支配するようになる。バンド計算に基づいて求めた磁気光学スペクトルは4eV付近の構造を予言し、実験結果をほぼ説明することができた。どの電子状態がどの光学遷移に対して寄与するかを見ることにより、4eV付近のスペクトル構造は、Auの \downarrow スピンの5dバンドから、Feの3d軌道とAuの励起状態の5f軌道が混成した \downarrow スピンのバンドへの遷移が主として寄与していることが明らかになった⁹。

スピン依存電気伝導の特性長と磁気抵抗効果

次に、スピン依存電気伝導の特性長を考える。スピンの依存する電子輸送には、大別して拡散によるものと弾道的なものがある。前者は巨大磁気抵抗効果(GMR)に寄与し、後者は量子化抵抗やトンネル磁気抵抗効果(TMR)に寄与する。

・ 拡散伝導

拡散伝導中の散乱に関わる特性長としては、平均自由行程 λ_t 、スピン反転長 λ_{SF} 、スピン拡散長 l_{SF} の3つが重要である。平均自由行程 λ_t は電子が散乱を受けるまでの拡散長で、一般の金属では不純物やフォノンによる散乱のため

100nm のオーダーである。スピン反転長 λ_{SF} は、2回スピン反転が起きるまでの距離で、平均自由行程と比較してかなり長い。一方、スピン拡散長 l_{SF} はスピンの散乱によってその向きを反転せずに拡散できる距離で、スピン拡散長は平均自由行程 λ_t とスピン反転長 λ_{SF} を使って、

$$l_{SF} = \sqrt{(1/3)\lambda_t\lambda_{SF}} \quad (2.5)$$

と表すことができる¹⁰。強磁性体の場合、電気伝導はスピンの向きに依存し、多数スピン(\uparrow)と少数スピン(\downarrow)のそれぞれのチャンネルで生じる散乱も非対称となり、各スピンに対する平均自由行程 λ_{\uparrow} 、 λ_{\downarrow} は異なる長さとなる。従って、スピン拡散長 l_{SF} も \uparrow スピンと、 \downarrow スピンとで非対称になる。強磁性体のスピン拡散長は次式で定義される。

$$l_{SF}^F = \frac{1}{\sqrt{(1/\ell_{\uparrow}^F)^2 + (1/\ell_{\downarrow}^F)^2}} \quad (2.6)$$

スピン拡散長は強磁性金属Fe, Coでは10 nmの程度であるが、Cuなど純度の高い非磁性金属では μm のオーダーになる。従って、周期が数nmの人工格子では電子はスピンの向きを保持したまま拡散し、スピンに依存した電気抵抗を示すのである¹¹。

以下では、Valet, Fertの解析に従って、電流を界面に垂直に流すCPP配置における巨大磁気抵抗効果(GMR)を導出する¹²。彼らは、スピン依存散乱の非対称度 α_F を導入し、スピンに依存する平均自由行程 $\lambda_t^F = \lambda_t(1 - \alpha_F^2)$ を導いた。ここに α_F は、 \uparrow スピン、 \downarrow スピン両チャンネルの電気抵抗率 $\rho_{\uparrow}^F, \rho_{\downarrow}^F$ を用いて、

$$\alpha_F = \frac{\rho_{\uparrow}^F - \rho_{\downarrow}^F}{\rho_{\uparrow}^F + \rho_{\downarrow}^F}$$

と表されるので、強磁性体におけるスピン偏極度に対応する。これらのパラメータを用いると、強磁性体のスピン拡散長 l_{SF}^F と非磁性体のスピン拡散長 l_{SF}^N は、下の式のようになる。

$$\text{強磁性体の場合： } l_{SF}^F = \sqrt{\frac{1}{6}\lambda_t^F\lambda_{SF}^F} = \sqrt{\frac{1}{6}(1 - \alpha_F^2)\lambda_t\lambda_{SF}} \quad (2.7)$$

$$\text{非磁性体の場合： } l_{SF}^N = \sqrt{\frac{1}{6}\lambda_t\lambda_{SF}} \quad (2.8)$$

となる。これらが、スピン依存伝導に関する重要な特性長である。強磁性/非磁性界面で伝導がスピンにどう依存するかを考える。以下の解析では \uparrow スピンと

↓スピンの状態密度に相当する化学ポテンシャル μ_{\uparrow} と μ_{\downarrow} を考える。

$$\begin{aligned} \nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) &= (\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) / \ell_{SF}^2 \\ \nabla^2(\sigma_{\uparrow}\mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}\mu_{\downarrow}) &= 0 \end{aligned} \quad (2.9)$$

強磁性体と非磁性体の界面における各スピンチャンネルの化学ポテンシャルと電流の連続条件を仮定すると、式(2.9)の解として、図4に示すような電気化学ポテンシャルの変化が得られる。

強磁性体には↑スピンと↓スピンの電子数に違いがあるので、拡散によって非磁性体に↑スピンの流れ込み界面に蓄積し、電気化学ポテンシャルの分裂がおきる。この分裂は対称に起きる。界面へのスピン蓄積はどこまで進むか

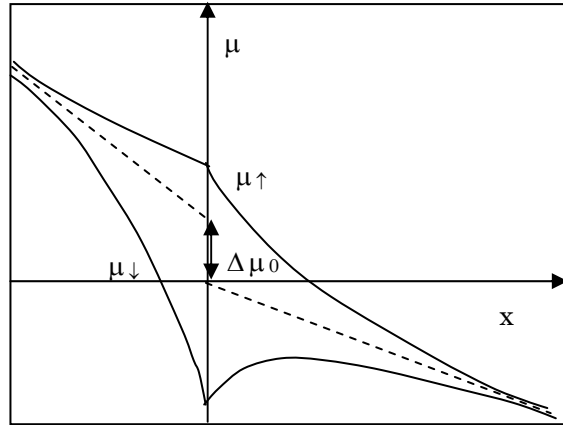


図4 強磁性/非磁性接合界面における電気化学ポテンシャルの分布図

という、これ以上のポテンシャル分裂が進むと強磁性体への逆拡散が起きるので、スピン蓄積の進行が止まり、定常状態になる。スピン蓄積がない状態（電荷の流れ）に対応するポテンシャルを点線で表すが、接合面で強磁性体側と非磁性体側とではポテンシャルとの食い違い $\Delta\mu_0$ を生じる。これが、接合抵抗を生み、CPP配置のGMRの起源となる。界面抵抗 R_{int} の具体的な表式は、

$$R_{int} = \frac{\Delta\mu_0}{ej} = \alpha_F^2 \frac{\ell_{SF}^N \rho_N}{1 + (1 - \alpha_F^2 (\ell_{SF}^F \rho_F / \ell_{SF}^N \rho_N))} \quad (2.10)$$

で与えられる¹⁰。

・弾道伝導

次に、弾道的な電子輸送を考える。素子の寸法が数 nm 以下になると、電子は拡散ではなく弾道的に伝導するようになる。その典型例が量子化抵抗である。断面方向に電子状態が量子化されるくらい細く、かつ散乱のない細線を考えると、その細線の2端子抵抗は長さによらず、一定値 h/e^2 という値をとる。これを量子化抵抗と呼ぶ。非磁性体ではスピンの縮退 2 を考慮して量子化抵抗は

$h/2e^2=12.9\text{k}\Omega$ になる。

弾道的な電子輸送のもう一つの例がトンネル磁気抵抗効果 (TMR) である。

TMR の最近の発展については 2.4 節に詳しいので、以下には、2.4 節の基礎となる強磁性体電極 1 / 絶縁体 / 強磁性体電極 2 の 3 層構造に

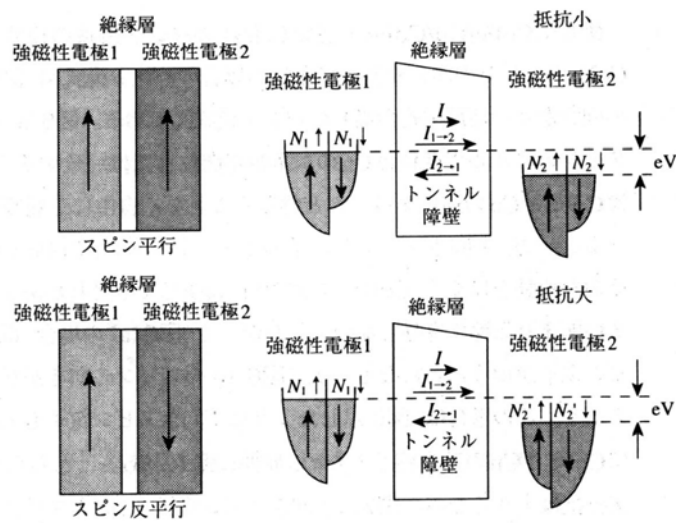


図 5 スピン依存トンネル伝導説明の模式図

におけるスピン依存の

トンネル現象についての Jullière のモデルを紹介する。このモデルは、2つの強磁性体電極におけるエネルギーバンド構造のスピン依存状態密度を用いて説明されている。

図 5 のトンネル接合において、絶縁層を介しての強磁性電極 1 から強磁性電極 2 へのトンネル伝導率は、絶縁層のポテンシャル障壁の透過率を一定値 T とすれば、多数スピンバンドの Fermi 面における状態密度を N_{\uparrow} 、少数スピンバンドの Fermi 面における状態密度を N_{\downarrow} として、

2つの強磁性電極の磁化が平行な場合、

$$\sigma_P \propto T \left(\frac{e^2}{h} (N_{1\uparrow} N_{2\uparrow} + N_{1\downarrow} N_{2\downarrow}) \right) \quad (2.11)$$

2つの強磁性電極の磁化が反平行な場合、

$$\sigma_{AP} \propto T \left(\frac{e^2}{h} (N_{1\uparrow} N_{2\downarrow} + N_{1\downarrow} N_{2\uparrow}) \right) \quad (2.12)$$

と表すことができる。トンネル磁気抵抗比 $\text{TMR}(\%)$ は

$$\begin{aligned}
TMR &= \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} \times 100 = \frac{\sigma_{AP}^{-1} - \sigma_P^{-1}}{\sigma_P^{-1}} \times 100 = \left(\frac{\sigma_P - \sigma_{AP}}{\sigma_{AP}} \right) \times 100 \\
&= \frac{N_{1\uparrow}(N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow}) - N_{1\downarrow}(N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow})}{N_{1\uparrow}N_{2\downarrow} + N_{1\downarrow}N_{2\uparrow}} \\
&= \frac{(N_{1\uparrow} - N_{1\downarrow})(N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow})}{\{(N_{1\uparrow} + N_{1\downarrow})(N_{2\uparrow} + N_{2\downarrow}) - (N_{1\uparrow} - N_{1\downarrow})(N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow})\}/2} \times 100 \\
&= \frac{2\{(N_{1\uparrow} - N_{1\downarrow})/(N_{1\uparrow} + N_{1\downarrow})\}\{(N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow})/(N_{2\uparrow} + N_{2\downarrow})\}}{1 - \{(N_{1\uparrow} - N_{1\downarrow})/(N_{1\uparrow} + N_{1\downarrow})\}\{(N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow})/(N_{2\uparrow} + N_{2\downarrow})\}} \times 100 = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \times 100
\end{aligned} \tag{2.13}$$

という単純な式で表すことができる。この式をJulliereの式という¹³。

ここに

$$P_1 = (N_{1\uparrow} - N_{1\downarrow}) / (N_{1\uparrow} + N_{1\downarrow}) \quad \text{および} \quad P_2 = (N_{2\uparrow} - N_{2\downarrow}) / (N_{2\uparrow} + N_{2\downarrow}) \tag{2.14}$$

は、それぞれ、強磁性電極 1 および強磁性電極 2 のスピン偏極度である。

P_1 および P_2 の評価は大変むずかしく、現在のところ、超伝導体との接合を作ってそのAndreev反射を測定することによって推定する方法が最も信頼性が高いとされている。よく知られた強磁性金属では、そのスピン偏極度は 50%程度であり、TMRは 70%程度と見積もられるが、このモデルでは、最近のMgO障壁層を用いた巨大TMR¹⁴を説明できないなど限界が指摘されている。詳細については、2.4節を参照されたい。

2. 1. 2 超常磁性

超常磁性とは何であろうか。超常磁性とは微粒子状の強磁性体が磁界中におかれたときあたかもランジバンの常磁性のように自発磁化の方向が熱的に揺らぐ効果のことである。超常磁性を通常の常磁性と比較すると、超常磁性の磁化の大きさは常磁性体に比べて4-5桁も大きく、飽和に要する磁界が小さく、磁気ヒステリシスを示さないという特徴をもつ。

超常磁性を示す**臨界粒径**は次のように見積もることができる¹⁵。絶対温度 T においてスピンは自由度あたり $kT/2$ 程度のエネルギーの振動を行っているが、体積 V の微粒子に含まれる多数のスピンが一斉に回転するような振動にも同じく $kT/2$ のエネルギーが分配されている。単位体積あたりの磁気異方性エネルギーを K_u と書くと、体積 V の微粒子のスピン回転を妨げるようなポテンシャルの山は $K_u V$ と表すことができるが、熱振動のエネルギー $kT/2$ がこの値より大きければ、超常磁性が起きると考えられる。臨界体積 V_0 は

$$V_0 = kT/2K_u$$

で与えられる。粒子の形状が球であるとする、臨界半径 r_0 は

$$r_0 = \left(\frac{3}{4\pi} V_0 \right)^{1/3} = \left(\frac{3}{8\pi} \frac{kT}{K_u} \right)^{1/3} \quad (2.15)$$

となる。 $K_u=10^5 \text{ J/m}^3$, $kT=25 \text{ meV}=4 \times 10^{-21} \text{ J}$ を代入すると r_0 は約 2nm となる。

磁気記録において、磁区を含むハードディスクの寿命の範囲でデータが安定であるための条件は、 $\eta=K_u V/kT$ というパラメータが 60 以上なければならないとされている。粒径 d が小さくなると、記録される粒子の体積 V はほぼ d^3 に比例して小さくなる。この減少を補うだけ、磁気異方性 K_u を増大できれば、超常磁性限界を伸ばすことができる。保磁力 H_c は $H_c=2K_u/M_s$ と書かれるから K_u を増大すると保磁力が増大し、ヘッド磁界が高くなりすぎて記録できなくなる。これを補うために、熱アシストによって保磁力を低下して記録する光磁気ハイブリッド記録技術がテラビット/in² を超える超高密度ストレージ技術として注目されている。

2. 1. 3 ナノスケール多層構造における磁気異方性¹⁶

層状構造における多くの実験結果によれば、層厚を減少すると表面・界面における複雑な相互作用のために、対応するバルク固有の異方性より桁違いに大きな一軸異方性が誘起できることが知られている。この現象は、現在までのところ第 1 原理計算では十分説明できていない。むしろ、ネールによる現象論的な式が説明に用いられる¹⁷。

このアプローチでは、厚さ d の磁性層に誘起された一軸異方性は次の経験式で与えられる。

$$K_{eff} = K_V + K_S/d$$

ここ K_V は体積磁気異方性(単位体積あたり)、 K_S は表面(界面)磁気異方性の寄与(単位面積あたり)である。この式は、 d が

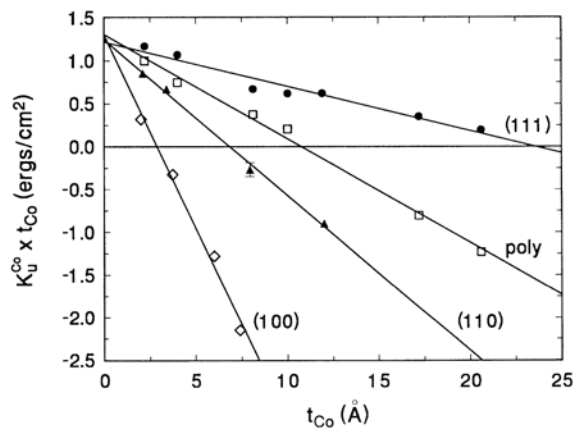


図 6 Co/Pt 人工格子における磁気異方性係数 K_u の Co 層厚依存性

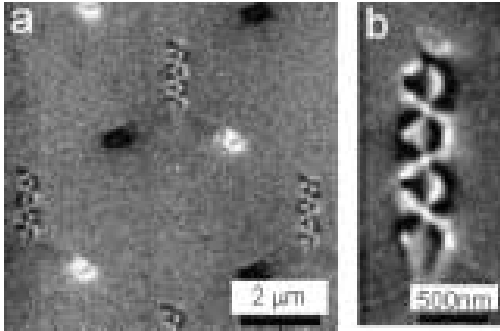


図 7 Y字型ドットの消磁状態での MFM 画像

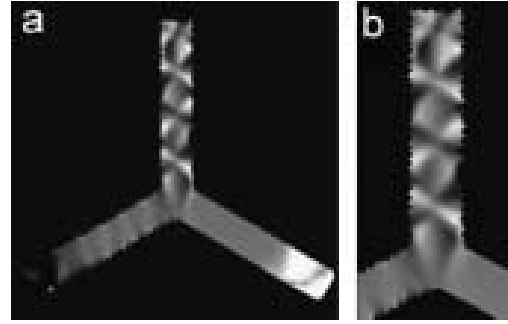


図 8 Y字型ドットの MFM 画像の LLG 方程式によるシミュレーション

ナノスケールになった場合も定性的に成り立つのでよく使われる。表面界面の寄与は、式(1)に d を掛けて得られる $K_{eff} d = K_V d + K_S$ にもとづき、 $K_{eff} d$ 積を厚さ d に対してプロットすることにより、 y 切片の大きさとして見積もることができる。

例えば、Pd/Co人工格子においては、図6に示すように $K_u d$ は d に対して直線になり、形状磁気異方性も考慮すれば次式が成立する。

$$K_u d = (K_V - 2\pi M_s^2) d + K_S \quad (2.17)$$

K_V は一様であるという仮定は表面と体積の寄与が拮抗する超薄膜においては、十分な物理的意味を持たない。

2. 1. 4 微小磁性ドット・磁性細線の磁性

微細パターンを施した場合の磁性は連続膜と本質的な違いがある。2. 1. 1に述べたように、ドットのサイズが特性長である磁壁のサイズと同程度かそれ以下になると、残留磁化状態において単磁区状態が安定化する。磁化反転機構には、形状磁気異方性が大きな役割をもち、微小パターンを施した膜はベタ膜より大きな保磁力を示す場合がある。また、スピン波がドット内に量子閉じこめられることがある。ドットの形状が単純な円形、方形あるいは矩形の場合のスピンの構造は、2. 1. 1に紹介したが、複雑な形状をもつ場合は、どうであろうか。一例として、シリコンに埋め込んだY字型のナノドット（腕の長さ $1.4 \mu\text{m}$ ，腕の幅 300 nm ，磁性体厚み 100 nm ）のスピンの構造を紹介する。

Y字ドットにおいては、図7に示すように、3つの腕のうち2本に磁極が現れるが、残りの1本の腕は、フラストレーションが起き多軸構造が現れる。こ

の構造についてLLG方程式（後述）を用いたマイクロ磁気シミュレーションを行ったところ、図9に示すように、2つの腕に磁極が生じ、3つめの腕にカイラリティの反転した還流磁区が複数個並んで多磁区構造を形成するという結果が得られ、実験結果をよく再現した。¹⁸

このような磁気構造のY字ドットを蜂の巣状に並べると、このような多磁区構造は現れず、向かい合うドットの腕に逆極性の磁極が見られる。

2. 1. 5 ナノ磁気素子の配列構造

磁性配列は、磁性体固有の性質に加えて、配列同士の相互作用および他の系との相互作用という観点からも興味深い。ナノ素子同士の間隔が狭くなると双極子場による静磁的相互作用が重要になる。その結果保磁力や反転磁場の変化、異方性の誘導、スピン波周波数のシフトなどをもたらす。図9は、シリコン基板に埋め込んだ正方形パーマロイドドット（1辺1 μm 、磁性体の厚み100nm、隣接ドット間隔300nm）配列のMFM像である。90度磁壁に彎曲が見られ、隣接するドットの彎曲が互いに逆転している様子が見られる。LLG方程式を用いたマイクロ磁気シミュレーションの結果にも、図10に示すように隣接ドット間でスピン環流方向が反転する様子が見られ、実験結果をよく説明する。この結果から、双極子場による静磁的相互作用の重要性を示している。¹⁹

1次元磁性ナノ構造においても、保磁力の増大、磁区構造の変化、磁化反転機構の変化、スピン波モードの量子化、双極子相互作用の効果などがみられる。

磁性体ドット配列は第2種の超伝導体膜と組み合わせるとボルテックス（磁束量子）の有効なピンニング中心となりうる。また、ナノ規則構造磁性体を半導体/強磁性体ハイブリッドと組み合わせると、2次元電子ガス（2DEG）の輸送特性を制御することができる。工学的には、磁性規則ナノ構造は、磁気記録、センサ、MRAM、スピントロニクスにおいてますます重要になってきている。

最近の活発な研究にもかかわらず磁性ナノ構造の物性を完全に理解するのは遠い道のりである。人工的に設計したナノ構造の作製、特に、10nm以下の超微細ナノ要素を均一に分散させた大面積の規則配列を作製することは、今でもチャレンジングなテーマである。

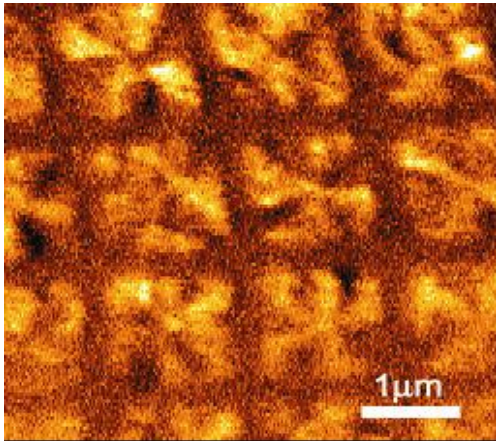


図 9 正方形ドットを狭い間隔で配列した構造の MFM 画像

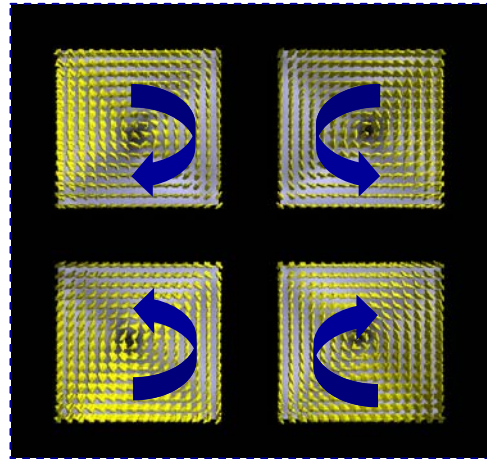


図 10 4つの正方形ドット配列の spin 構造の LLG シミュレーション結果

2. 1. 6 LLG 方程式：磁区・磁壁のダイナミクス

ナノ構造の磁性を考える上で、磁化反転機構の系統的な研究、なかんずく短い時間スケールでの動的な効果の研究が必要である。また、磁性ナノ要素の配列内ナノ構造間の相互作用、および、磁性ナノ構造と他の系との相互作用をよく理解することが重要になってきた。微細構造における磁気状態を解析する技法をマイクロマグネティクス²⁰と呼ぶ。マイクロマグネティクスの技法としては、磁気エネルギーを極小化する解法²¹と、磁気モーメントの歳差運動を記述する運動方程式にスピン系と格子系との間に相互作用を考慮して緩和項（Gilbert ダンピング項）を導入した Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式を直接解く技法²²とがある。特に、スピンの動的な振る舞いを記述するのに適した運動方程式が Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式である。最近になり、スピン注入磁化反転、電流駆動磁壁移動などの非平衡電子系のスピンのもたらす角運動量のトランスファーに着目し、このような項を付け加えた LLG 方程式が使われるようになってきた²³。ここでは、はじめにスピントランスファートルクの項を付け加えない LLG 方程式について述べ、その後、この項を含んだ場合の扱いについて触れる。

・ Brown 方程式²⁴

磁化構造に付随する磁気的エネルギー U は、エネルギー密度（単位体積あたりのエネルギー）を ε とすると、磁化 $M(M_x, M_y, M_z)$ についての汎関数として式

(2.18)に示すように表される。

$$U\left(x, y, z, M_x, M_y, M_z, \frac{\partial M_x}{\partial x}, \frac{\partial M_y}{\partial y}, \frac{\partial M_z}{\partial z}\right) = \iiint \varepsilon dv \quad (2.18)$$

ここに、全エネルギー密度 ε は、交換エネルギー密度 ε^A 、異方性エネルギー密度 ε^K 、反磁界エネルギー密度 ε^D 、印加磁界のエネルギー密度 ε^E を用いて、

$$\varepsilon = \varepsilon^A + \varepsilon^K + \varepsilon^D + \varepsilon^E \quad (2.19)$$

と表すことができる。それぞれのエネルギーは、

$$\begin{aligned} \varepsilon^A &= \frac{A}{M_S^2} (\nabla M_x^2 + \nabla M_y^2 + \nabla M_z^2) \\ \varepsilon^K &= \frac{K_u}{M_S^2} (M_x^2 + M_y^2) \quad \text{Easy axis : x - direction} \\ \varepsilon^D &= -\frac{1}{2} \mathbf{H}^D \cdot \mathbf{M} \\ \varepsilon^E &= -\mathbf{H}^E \cdot \mathbf{M} \end{aligned} \quad (2.20)$$

という式で与えられる。

平衡状態における磁化構造を求めるには、 $|\mathbf{M}| = \text{Const}$ という条件のもとで U の停留条件を与える次の Euler 方程式(2.21)を解けばよい。

$$\frac{\delta \varepsilon}{\delta \mathbf{M}} = 0 \quad (2.21)$$

この式は、特にBrownの方程式と呼ばれる。この式を解析的に解くことは極めて困難であり、BrownとLaBonte²¹、Hubert²⁵らは、この方程式を初めて数値的に解き、Ni₈₀Fe₂₀薄膜中の磁壁構造を解析した。

・LLG方程式

スピントルクの項を含まないLLG方程式は、次式で与えられる。

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -|\gamma| (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) + \frac{\alpha}{M_S} \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \quad (2.22)$$

あるいは、第2項の $\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}$ を $-|\gamma| (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff})$ に置き換えた次式が使われる。

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -|\gamma| (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) - |\gamma| \frac{\alpha}{M_S} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) \quad (2.23)$$

ここに、 \mathbf{M} はその大きさが M_S であるような磁化ベクトル、 \mathbf{H}_{eff} は磁化に作用する有効磁界、 γ はジャイロ磁気定数、 α は減衰定数である。この式の第 1 項は、磁化ベクトルの時間変化が磁化と有効磁界に垂直な方向に起きることを表しており、図 11(a) に示すように磁界中で磁気モーメントが $\omega_{FM} = |\gamma|H_{eff}$ の角振動数で歳差運動を行う様子を記述している。一方、第 2 項は、ダンピングを表す項で、図 11(b) に示すように、倒れた磁気モーメントが時間とともに \mathbf{H}_{eff} の方向にらせんを描きながら戻っていく様子を記述している。

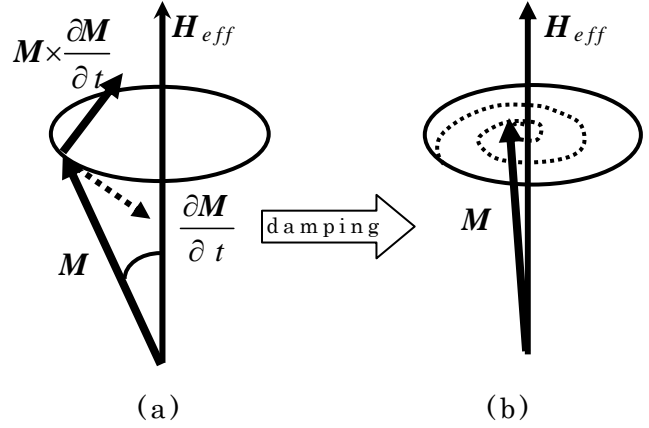


図 11 LLG 方程式の概念図

磁性体内部に働く有効磁界 \mathbf{H}_{eff} は、外部磁界だけを意味しているわけではなく、磁化に作用する全ての相互作用を磁界という形で表現しており、式(2.20)で表されるエネルギー密度 ε から変分原理により求める。

$$\left[\mathbf{H}_{eff} \right]_i = - \frac{\partial \varepsilon}{\partial M_i} \quad (2.24)$$

これより、有効磁界は、交換磁界、異方性磁界、反磁界、外部磁界からなり、

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{eff} &= \mathbf{H}^A + \mathbf{H}^K + \mathbf{H}^D + \mathbf{H}^E \\ &= \frac{2A}{M_S^2} \begin{bmatrix} \nabla^2 M_x \\ \nabla^2 M_y \\ \nabla^2 M_z \end{bmatrix} - \frac{2K_u}{M_S^2} \begin{bmatrix} M_x \\ 0 \\ M_z \end{bmatrix} + \sum_{Cell} \begin{bmatrix} K_{xx} & K_{xy} & K_{xz} \\ K_{yx} & K_{yy} & K_{yz} \\ K_{zx} & K_{zy} & K_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} M'_x \\ M'_y \\ M'_z \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} H_x^E \\ H_y^E \\ H_z^E \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2.25)$$

と表される。ここで、 M_S で規格化した磁気モーメント \mathbf{m} を導入し、ダンピングを繰り込んだ磁界 \mathbf{H}' を使って表すと、式(2.22)は次式のように書ける。

$$\frac{1 + \alpha^2}{|\gamma|} \cdot \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\mathbf{m} \times \left\{ \mathbf{H}_{eff} + \alpha (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{eff}) \right\} = \mathbf{H}' \times \mathbf{m} \quad (2.26)$$

ここに、

$$\begin{aligned} |\mathbf{m}| &= 1 \\ \mathbf{H}' &= \mathbf{H}_{eff} + \alpha (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{eff}) \\ \mathbf{H}_{eff} &= \mathbf{H}^A + \mathbf{H}^K + \mathbf{H}^D + \mathbf{H}^E \end{aligned} \quad (2.27)$$

式(2.26)と(2.27)が LLG 方程式を数値的に解く際の基本式である。

・スピントルクを考慮したLLG方程式¹⁰

スピン偏極した電流を強磁性体に強制的に注入すると磁化を反転させることができることは、1996年にSlonczewski²⁶とBerger²⁷とによって独立に提唱され、2000年に実験によって検証された^{28,29}。

図 12 に示すように、電子は強磁性電極 FM₁ から非磁性電極 N を介して強磁性電極 FM₂ に流れ、スピン各運動量を伝達して FM₂ の磁化を反転させる。

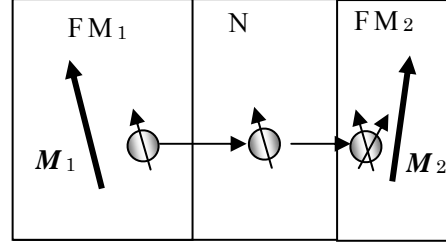


図 12 スピン注入磁化反転の概念図

FM₁、をそれぞれ、 M_1 、 M_2 とする。 M_1 と M_2 とは互いに角度をなして配置している。この素子に電圧を加えて電流を流すと、伝導電子のスピンは FM₁において M_1 方向に偏極し、その向きを保持したまま非磁性層 N を透過し FM₂に入る。ここで、伝導電子は FM₂の磁気モーメント M_2 方向に再偏極を受けるが、この過程でスピン各運動量は保存されなければならないので、再偏極の過程で失った成分は M_2 に移行してトルクとして働く。このときの動的な過程は、(2.23)にスピントルクの項を付け加えた次式で記述される。

$$\frac{\partial \mathbf{M}_2}{\partial t} = -|\gamma|(\mathbf{M}_2 \times \mathbf{H}_{eff}) - |\gamma| \alpha \hat{m}_2 \times (\mathbf{M}_2 \times \mathbf{H}_{eff}) + g \frac{\hbar I_e}{2 e} \hat{m}_2 \times (\hat{m}_2 \times \hat{m}_1) \quad (2.27)$$

ここに、 I_e は電流密度であり、 \hat{m}_1 、 \hat{m}_2 はそれぞれ、 M_1 、 M_2 方向の単位ベクトルである。上式の第3項がスピントルクの項で、 g はスピン伝達の効率を表している。この項は、電流の大きさと流す方向とに依存して増幅または減衰を受ける。 $M_2 = |\mathbf{M}_2|$ とし、 M_2 に作用する \mathbf{H}_{eff} が FM₁の磁化方向 \hat{m}_1 に平行であることを考慮すると、第2項と第3項をまとめることができ、式(2.27)は次のように変形できる。

$$\frac{\partial \mathbf{M}_2}{\partial t} = -|\gamma|(\mathbf{M}_2 \times \mathbf{H}_{eff}) - \tilde{\alpha} |\gamma| M_2 H_{eff} \{ \hat{m}_2 \times (\hat{m}_2 \times \hat{m}_1) \} \quad (2.28)$$

ここに、 $\tilde{\alpha} = \alpha - g \frac{\hbar I_e}{2 e} \frac{1}{|\gamma| M_2 H_{eff}}$ は、有効ダンピング定数である。スピントルクによる磁化反転が起きるためには、スピントルクがダンピング定数より大きくなければならない。

その臨界条件は $\tilde{\alpha} < 0$ でなければならない。これより、スピン注入磁化反転が起きるための臨界電流密度を見積もることができる。

$$I_e^{crit} > \frac{2eM_2}{\hbar g \tau_{relax}} \quad (2.29)$$

$$\text{ここに } \tau_{relax} = \frac{1}{\alpha |\gamma| H_{eff}} = \frac{1}{\alpha \omega_{FM}}$$

Slonczewskiは、リーズナブルな物質定数を使って、電流密度の臨界値として 10^7A/cm^2 程度になることを予言した²⁶。現在、すでにこの値以下の電流密度で電流注入磁化反転が起きている。詳細は、2.4節を参照されたい。

¹ J. I. Martín, J. Nogués, Kai Liu, J. L. Vicent and Ivan K. Schuller: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **256** (2003) 449–501

² 宮島英紀、大谷義近：日本応用磁気学会第89回研究会「メゾスコピックな技術－磁化制御の将来への展望」資料(1995.3.7) pp.11-20.

³ G. Herzer, *IEEE Trans. Magn.*, **25**, pp.3327-3329, (1989).

⁴ G. Herzer, *IEEE Trans. Magn.*, **26**, pp.1397-1402, (1990)

⁵ 佐藤勝昭：日本応用磁気学会第122回研究会「遷移金属・貴金属系磁気記録材料の磁気物性と磁区構造」資料(2002.1.18)pp.5-12.

⁶ 鈴木義茂、片山利一：*応用物理* **63**, 1261 (1994)

⁷ 片山利一、鈴木義茂：日本応用磁気学会誌 **20**, 764 (1996)

⁸ K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, Y. Suzuki: *J. Appl. Phys.* **86** [9] 4985-4996 (1999)

⁹ M. Yamaguchi, K. Takanashi, K. Himi, K. Hayata, K. Sato and H. Fujimori: *J. Magn. Magn. Mater.* **239** (2002) 255-260

¹⁰ 大谷義近：日本応用磁気学会第31回MSJサマースクール「応用磁気の基礎」資料 pp.109-118

¹¹ 鈴木義茂：日本応用磁気学会第30回MSJサマースクール「応用磁気の基礎」資料 pp.93-106

¹² T. Valet and A. Fert: *Phys. Rev.* **B48** (1993) 7099.

¹³ M. Julliere: *Phys. Lett.* **54A** (1975) 225

¹⁴ S. Yuasa, A. Fukushima, T. Nagahama, K. Ando, Y. Suzuki: *Jpn. J. Appl. Phys.* **43** (2004) L588.

¹⁵ 近角聡信：強磁性体の物理（下）、裳華房

¹⁶ A.N. Bogdanov, U.K. Rößler: reprint arXiv:cond-mat/0101262

¹⁷ L. Néel, *J. Physique Radium* **15** (1954) 225.

¹⁸ K. Sato, K. Machida, T. Yamamoto, T. Ishibashi and T. Yamaoka: *J. Magn. Magn. Mater.* **310** (2007) 2342.

¹⁹ K. Sato, T. Yamamoto, T. Tezuka, T. Ishibashi, Y. Morishita, A. Koukitu, K. Machida, T. Yamaoka: *J. Magn. Magn. Mater.* **304** [1] (2006) 10.

²⁰ W. F. Brown, Jr.: “Micromagnetics,” Wiley-inter-science, New York, 1963.

²¹ W.F. Brown Jr. and A.E. LaBonte: *J. Appl. Phys.* **36** (1965) 1380; A.E. LaBonte: *J. Appl. Phys.* **40** (1969) 2450.

²² R.A. Victora: *Phys. Rev. Lett.* **58** (1987) 1788.

²³ A. Thiaville, Y. Nakatani, J. Miltat and N. Vernier: *J. Appl. Phys.* **95** (2004) 7049.

²⁴ 町田賢司：東京農工大学学位論文「磁性体ナノ構造の作製と磁化状態の解析」(2006.3)第4章による

-
- ²⁵ A. Hubert: Phys. Stat. Sol. **32** (1969) 519.
²⁶ J.C. Slonczewski: J. Magn. Magn. Mater. 159 (1996) L1.
²⁷ L. Berger: Phys. Rev. B54 (1996) 9353.
²⁸ J.A. Katine, F.J. Albert, and R.A. Buhrman: Appl. Phys. Lett. 76 (2000) 354.
²⁹ J.C. Slonczewski: Phys. Rev. B71 (2005) 24411.