

氏名	みつ また ちはる		
授与学位	三 俣 千 春		
学位授与年月日	博士 (工学)		
学位授与の根拠法規	平成 16 年 3 月 25 日		
研究科, 専攻の名称	学位規則第 4 条第 1 項		
学位論文題目	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 材料物性学専攻		
指導教官	強磁性/反強磁性積層膜の交換結合バイアス発現機構の模型解析		
論文審査委員	東北大学教授 深道 和明	東北大学教授 猪俣浩一郎	
	主査 東北大学教授 深道 和明	東北大学教授 猪俣浩一郎	
	東北大学教授 高梨 弘毅		

論文内容要旨

1. 研究の背景

1956年にCoOとCoの界面において強磁性層の磁化曲線がシフトした状態¹⁾が初めて観察され、これは、反強磁性/強磁性界面に関係した磁気的現象として、今日では交換結合バイアスと呼ばれている。この現象は90年代になって、磁気記録技術に応用されることによって幅広く知られるようになり、スピナルブヘッド²⁾やMRAM³⁾における強磁性層の磁化方向制御、また、最近では垂直磁気記録媒体の裏打ち層⁴⁾等に用いられるようになり、その特性向上を目指した材料開発が盛んになった。

これらの材料開発や応用技術の発展にともなって、バイアス発生機構を説明するため様々な模型解析も行われ、以下の問題点が指摘された。第1は、磁性原子間の交換相互作用のエネルギーと積層界面に働く交換結合バイアスのエネルギーが著しく異なる。第2は、積層界面の結晶方位によっては反強磁性層の持つ±Sのスピンの打ち消しあがって界面の交換相互作用の総和エネルギーが零になることである。第1の問題を解決するために提案されたのが磁壁構造模型⁵⁾で、反強磁性スピンの磁壁構造を形成する。第2の問題に対しては積層界面の面荒れの有無が議論の対象と成り、界面に原子層のオーダーの面荒れを有するランダム磁場模型⁶⁾が報告された。一方、反強磁性層と強磁性層のスピンの方向が90°で交差するスピフロップ模型⁷⁾では面荒れが不用であることが示されたが、後にスピフロップ模型には別解がある⁸⁾ことが指摘され、面荒れの問題には未だ議論の余地が残されている。

以上の議論では反強磁性層が共線形スピン構造に限定されているが、実際に磁気デバイスに応用されている反強磁性材料は面心立方構造のMn系合金材料がほとんどで、そのスピン構造も共線形であるとは限らない。そこで磁性原子と非磁性原子を含む不規則合金をも考慮することで、より現実的な系における交換結合バイアスの発生に対して反強磁性層のスピン構造がどのような役割を果たしているか検討することにした。

2. 模型と計算方法

解析は古典ハイゼンベルグ模型を用い、(1)式のハミルトニアンをモンテカルロ法およびランダウーリフシッツ(Landau-Lifshitz)運動方程式の中で評価し反強磁性/強磁性積層膜の磁気構造を決定した。

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \rangle - \sum_{\langle i,k \rangle} J_{2ik} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_k \rangle - \sum_i D_i \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{n}_i \rangle^2 - g\mu_B \sum_i \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{H}_{\text{app}} \rangle \quad (1)$$

ここで J_1 と J_2 は第1近接および第2近接原子間の交換定数で \mathbf{S}_i は*i*番目の単位スピンベクトル、 D_i は磁気異

方性定数、 n_i は磁化容易方向を示す単位ベクトル、 H_{app} は印加磁場のベクトルを表す。交換相互作用を第2近接まで考慮する理由は、反強磁性層における長距離秩序の安定性⁹⁾に関連するためである。積層膜の原子配置は Fig.1 に示すように、 $\langle 111 \rangle$ 配向しており強磁性層を9原子層、反強磁性層10~100原子層とした。反強磁性層は結晶構造が $L1_0$ 型規則構造の場合と γ -相不規則合金場合を考慮し、前者では磁性原子と非磁性原子が50%ずつ、後者は磁性原子が75%で非磁性原子が25%の組成を仮定した。

3. 反強磁性層のスピンの構造

反強磁性層が γ -相不規則合金の場合、 $[001]$ 軸方向の交換定数 J_c と (001) 面内方向の交換定数 J_{ab} によってスピン構造が変化する。反強磁性層に関するモンテカルロ計算の結果、 $J_c = J_{ab}$ の条件では3Qスピン密度波構造が実現され、 $J_c < J_{ab}$ と $J_c > J_{ab}$ ではそれぞれ2Qと1Q構造が安定化された。

4. 不規則合金モデルと交換結合バイアスの磁気構造

これらのスピン構造が実現される反強磁性層の条件に対して強磁性層を積層した時の磁気特性を Landau-Lifshitz 運動方程式を用いて評価すると、1Qや2Q構造では交換結合バイアスが発生せず3Qスピン構造の場合のみバイアスが生じる結果となった。それぞれの磁化曲線を Fig.2 に示す。また、反強磁性層が AF-I 型スピン構造を示す $L1_0$ 型規則構造の場合も交換結合バイアスは発生しない。

反強磁性層のスピン構造による交換結合バイアスの有無は、それぞれのスピン構造を実現する交換結合のエネルギー状態によって決定されている。交換結合バイアスが発生しない共線形スピン構造と、バイアスが発生した非共線形スピン構造の違いはスピンプラストレーションの効果による。共線形状態では局所的なスピン間の最低エネルギーと系全体の最低エネルギーをもたらすスピン配列が一致し、スピンプラストレーションは発生しない。一方、3Qスピン構造では隣接スピン間の交換エネルギーが最低となる 180° の相関角と異なるスピン配列を有しており、フラストレーションが発生している。よって、交換結合バイアスが発生するためにはスピンプラストレーションの影響による積層界面のスピン構造が重要な役割を果たしていることが分かった。

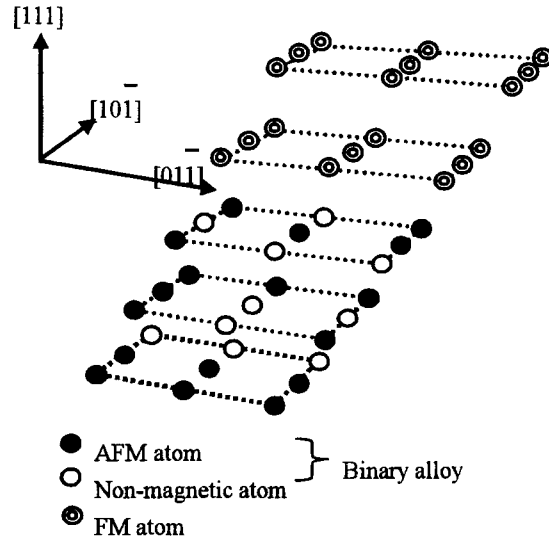


Fig. 1 The atomic configuration in the AFM/FM bilayer. Magnetic atoms (75at%) and non-magnetic atoms (25at%) are included in the γ -phase AFM alloy. Closed and Opened circles note the magnetic and non-magnetic atoms in the AFM layer. The double circle represents the magnetic atom in FM layer.

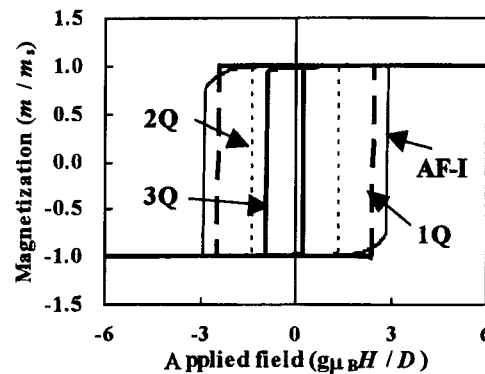


Fig. 2 Magnetization loops of AFM/FM bilayers with various spin structures in the AFM layer. The thick line notes the 3Q, the dots note the 2Q, the dashed line notes 1Q in the γ -phase disordered alloy. The thin lines notes AF-I in the $L1_0$ -type ordered alloy.

5. 反強磁性規則合金へのフラストレーションの導入

模型解析の結果、スピンフラストレーションの無い共線形スピン構造を有する $L1_0$ 型規則合金では交換結合バイアスが発生しなかった。しかし、実際には $L1_0$ 型規則合金である MnNi 合金や MnPt 合金を用いた積層膜ではバイアスが発生する。そこで Fig.3 に示すように反強磁性層を領域構造に分割した Multi-domain の導入を用いて計算を行った。Multi-domain 導入においては領域内部の原子配列を変化させて $\langle 110 \rangle$ の結晶軸が 3 つの異なる方向に向くよう設定し、磁化容易軸の方向も結晶軸に合わせて配置した。それぞれの領域は膜厚方向では分割されていない。計算で求めた磁化曲線ではシフトが観察され、規則合金の場合でも交換結合バイアスが発生する模型を得ることができた。Multi-domain 導入では磁気異方性の方向と結晶軸が異なる領域の界面でスピン間の交換エネルギーが増大する。また、積層された強磁性層のスピン向きと反強磁性層領域内のスピン配列に対する Néel 軸のなす角度が領域ごとに異なるため、積層界面においてもエネルギー分布が一様でなくなる。よって、Multi-domain 導入では規則合金にスピンフラストレーションの効果を注入したことで交換結合バイアスが発生したと解釈できる。

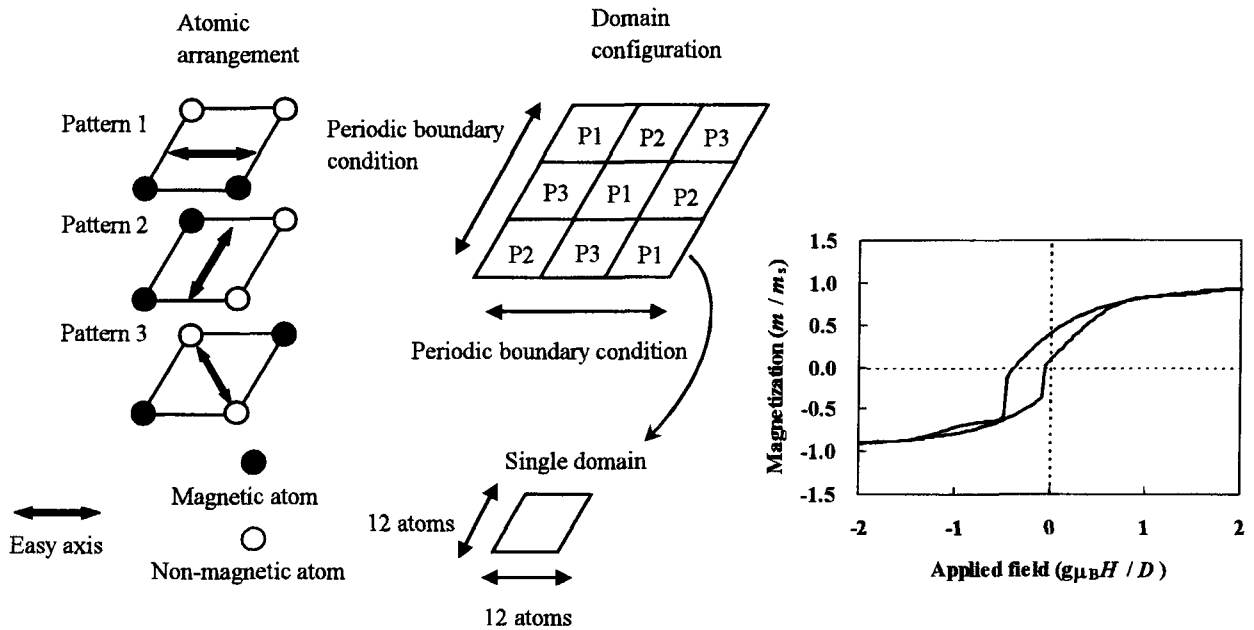


Fig. 3 The multi-domain model for the $L1_0$ -type ordered AFM layer, and the calculated magnetization loop of the multi-domain model.

6. 反強磁性層の磁気異方性と回転磁場

交換結合バイアスに関する反強磁性層の磁気異方性の影響について検討した。計算の結果、Fig. 4 に示すように、磁気異方性のエネルギーが小さい場合、交換結合バイアスは発生せず。磁気異方性エネルギーが一定値を超えると、交換結合バイアスが発生する。磁気異方性エネルギーの臨界値を決定する要因は、反強磁性層の磁壁構造と関連しており、反強磁性層厚よりも磁壁幅が小さくなるような磁気異方性エネルギーの条件が必要である。回転磁場を用いたトルク評価すると、磁壁が発生しない条件では結晶の対象性に合致したトルク曲線が得られた。一方、反強磁性磁壁を伴って、交換結合バイアスが発生している条件では、トルク曲線の対称性は現れないことが明らかになった。

この結果は、反強磁性層内部での磁化回転を反映しており、磁壁を伴わない状態では全ての反強磁性スピンは一斉回転し、磁壁が存在する状態では回転角が層の深さによって変化した非一様な回転を示す。

7. 交換結合バイアス模型の検証

本研究の模型は、既報告の模型と比較して、共線形および非共線形スピン構造を一括して解析可能にした点が新たな特徴である。共線形と非共線形のスピン層転移は、磁性原子の配列を変化させることで自然に得られ、非磁性原子を含む反強磁性合金を模型に取り入れたことの効果である。また、報告された実験値との定量的比較を行った結果、模型計算による値はある程度の誤差を含むものの、実験値と同じオーダーとなった。したがって、本研究で提唱した模型の妥当性が明らかになった。

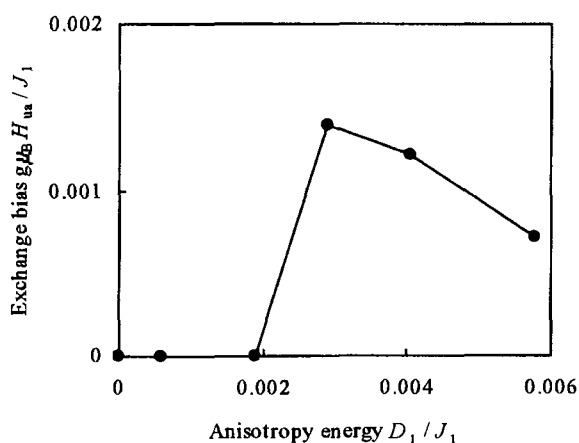


Fig. 4 The dependence of the exchange bias on the magnetic anisotropy energy in the AF layer.

8. 総括

強磁性積層膜の交換結合バイアス現象において、スピンプラストレーションと反強磁性磁壁構造の存在が積層界面でのバイアス発生の起源になっている。バイアス現象は積層膜の磁化曲線をシフトさせるような一方向性の磁場となって現れるので、磁化過程は外部磁場に対して非対称である必要がある。反強磁性磁壁構造は外部磁場に対して積層膜の磁気エネルギーを非対称化する役割を担っている。また、スピンプラストレーションは反強磁性層の磁気秩序を決定し、磁壁構造が発生する条件となる界面のスピン構造を実現する。すなわち、強磁性/反強磁性積層膜における交換結合バイアスの発生には、スピンプラストレーションの効果と反強磁性磁壁の形成が必要であることが明らかになった。

参考文献

- 1) W. H. Meiklejohn and C. P. Bean: Phys. Rev., **102** (1956) 1413.
- 2) C. Tsang, R.E.Fontana, T. Lin, D. E. Heim, V. S. Speriosu, B. A. Guney and M. L. Williams: IEEE Trans. Magn., **30** (1994) 3801.
- 3) D. D. Tang, P. K. Wang, V. S. Speriosu, S. Lee and K. K. Kung: IEEE Trans. Magn., **31** (1995) 3206.
- 4) H. S. Jung and W. D. Doyle: IEEE Trans. Magn., **37** (2001) 2294.
- 5) D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus and E. Kay: J. Appl. Phys., **62** (1987) 3047.
- 6) A. P. Malozemoff: Phys. Rev. B, **35** (1987) 3679.
- 7) N. C. Koon: Phys. Rev. Lett., **78** (1997) 4865.
- 8) T. C. Schulthess and W. H. Butler: Phys. Rev. Lett., **81** (1998) 4516.
- 9) M. W. Long: J. Phys. C, **1** (1989) 2857.

論文審査結果の要旨

強磁性／反強磁性交換結合バイアスは、磁気記録におけるスピバルブヘッド等に応用されているが、その発現機構は必ずしも明らかになっていない。本論文は古典スピン模型を用いた数値解析によって、交換結合バイアス発生を説明する模型を提唱し、合金系反強磁性膜における交換結合バイアス現象の原因を考察し、それらの研究成果をまとめたもので、全編 8 章よりなる。

第 1 章は序論であり、研究の背景および目的を述べている。

第 2 章では、数値計算の手法および計算模型の内容について述べている。

第 3 章では、不規則合金模型による反強磁性層のスピン構造について述べている。 γ -相不規則合金では、結晶の歪みを考慮した計算により共線形、および非共線形スピン構造が実現されることが示されている。

第 4 章では、不規則合金模型による交換結合バイアス発生について述べている。反強磁性層が共線形スピン構造ではバイアスが発生せず、非共線形スピン構造ではバイアスが発生することが示された。更に、バイアスが発生するには反強磁性層内に、磁壁構造が形成されることが必要であることが述べられている。

第 5 章では、領域構造を有する規則合金模型による交換結合バイアス発生について述べている。スピン構造が共線形となる規則合金では、結晶欠陥を考慮した領域模型によって、スピンプラストラクション効果が付加され、交換結合バイアスが発生することが示された。

第 6 章では、バイアス発生に必要な反強磁性磁壁の形成と磁気異方性の関係について述べられている。磁気異方性が臨界量以下では反強磁性磁壁が発生せず、臨界量を超えると磁壁が形成されて交換結合バイアスが発生することが示されている。

第 7 章では、模型の計算結果と実験値の半定量的な比較が述べられている。模型と実験は同じオーダーのバイアス磁場になることが示された。

第 8 章は、総括である。

以上要するに本論文は、強磁性／反強磁性積層膜の交換結合バイアス発生機構を説明する模型を提唱し、合金系反強磁性材料による交換結合バイアス現象の数値解析を可能としたもので、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。