

超薄膜磁性体の磁区のコンピュータシミュレーション

遠藤新一 松原史卓 佐々木崇徳
東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻

1 はじめに

近年のエピタキシャル結晶成長技術は Cu, Ag 等の非磁性金属基板上に厚さ数原子層の超薄膜磁性体を作ることを可能にした。これらの超薄膜磁性体では通常のバルク磁性体とは異なる様々な性質が観測されている。Cu 基板上に成長した超薄膜 Fe/Cu では、膜厚が大きくなると磁化の方向が膜面に垂直から平行に変わる再配列転移が観測される [1]。この再配列転移は温度を上げていったときにも観測される。逆に Ni/Cu では磁化の方向が膜面に平行から垂直に変わることで再配列転移が起こる [2]。又、異なる成長条件下で作製した超薄膜 Fe/Cu では膜厚を増していくと表面層のみ磁性を持つ不思議な現象も報告されている [3]。また、このような超薄膜磁性体でも磁区が観測されるが、その形状は膜厚や温度に依存して様々な様相を示す [4]。

従来、磁性体の巨視的な磁気構造(磁区)の研究はマイクロマグネティックモデルを使ってなされてきた [5]。これは、磁性体を N 個の小磁石に分割して、これらの小磁石の安定な配向を求めるものである。しかし、数原子層からなる超薄膜では、このモデルが使えないことは明らかである。他方、ミクロなハミルトニアンをもとにした超薄膜磁性体の磁区構造の研究も行われている [6]。これは磁気構造の第一原理計算とも言われるものであり、マイクロマグネティックモデルによる研究と相補的なものである。このミクロなハミルトニアンに基づく計算には莫大な計算時間がかかるため、この方面からの研究は 2 次元モデルに限られてきた。超薄膜磁性体の磁区構造の本質を明らかにするためには、厚さを持った積層膜の大規模シミュレーションを実行する必要がある。最近筆者らの研究室で開発された方法によってこの計算時間が大幅に短縮され、積層膜の磁気構造の研究が可能になりつつある。ここではその一端を紹介する。

2 モデル及び方法

簡単のため, $L \times L$ の 2 次元正方格子が L_z 層積み重なった積層格子を考える. ここで, 積層面方向には周期境界条件, 積層面と垂直な方向には開放端境界条件を課す. 系のエネルギーは次のハミルトニアンで与えられる.

$$\begin{aligned}\mathcal{H} = & -J \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - K \sum_{i \in \text{surface}} (S_i^z)^2 \\ & + D \sum_{i>j} \left\{ \frac{\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{S}_i)(\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{S}_j)}{r_{ij}^5} \right\}. \quad (1)\end{aligned}$$

ここで, $\mathbf{S}_i (|\mathbf{S}_i| = 1)$ は古典ベクトルスピンであり, $\langle ij \rangle$ は最近接スピン対を表す. 第一項は交換相互作用エネルギー, 第二項は表面異方性エネルギー, 第三項は磁気双極子相互作用エネルギーを表し, J , K 及び $D (\equiv (g\mu_B S)^2/a^3)$ はそれらの強度を表す定数である. a は正方格子の格子定数であり, また $c = a$ とする. ここで c は積層面間の距離である. 変数 \mathbf{r}_{ij} は i スピンと j スpinの相対位置ベクトルを格子定数 a で計ったものである. 以下, x 軸と y 軸を面内にとり z 軸をそれらと垂直方向にとる.

ここではモンテカルロ (MC) 法を用いる. この方法の最大の利点は熱揺らぎが自然に取り込まれ, 有限温度の性質が容易に調べられる点にある. MC 法は以下の手順で実行される: (1) 一つのスピンに着目し, このスピンにかかる他の全てのスピンからの有効場を計算する. (2) この有効場をもとに, ボルツマン重率を求め, それに従って, このスピンの方向を再配置 (更新) する. (3) この操作を全てのスピンに対して実行する (1 MC ステップ). (4) これを多数回繰り返して物理量の平均値を求める. 実行上の最大の問題は磁気双極子相互作用の取り扱いである. この相互作用は交換相互作用に比較して非常に小さい ($D/J \sim 10^{-3}$) が全てのスピン間に働くために無視できない. 事実この磁気双極子相互作用が磁区形成の原因となっている. 計算時間のほとんどが双極子場の計算に費やされることは言うまでもない. 我々の研究室ではこの困難を緩和する効率的なアルゴリズム, 双極子場不連続更新 MC (DUDMC) 法を開発した. この詳細は既に報告してあるのでそちらを参照して戴きたい [7]. この方法により, 積層膜の磁気構造の研究が可能になりつつある.

さて, モンテカルロ法では磁気構造だけでなく比熱や磁化等の温度特性も調べられる. これらの物理量の測定は, 磁気構造の変化を見る上で非常に重要である. 比熱 C , 積層面に平行な磁化 (面内磁化) M^{\parallel} , 積層面に垂直な磁化 (面直

磁化) M^\perp は以下の式を用いて計算される.

$$C = \frac{1}{NT^2}(\langle \mathcal{H}^2 \rangle - \langle \mathcal{H} \rangle^2), \quad (2)$$

$$M^\parallel = \frac{1}{N}\langle \sqrt{(M^x)^2 + (M^y)^2} \rangle, \quad (3)$$

$$M^\perp = \frac{1}{N}\langle |M^z| \rangle, \quad (4)$$

ここで $M^\nu = \sum_i S_i^\nu$ ($\nu = x, y, z$), N はスピン数, T は温度 ($k_B = 1$ の単位系をとる) であり, また $\langle \dots \rangle$ はMCステップによる平均を表す. 計算は J を基準として $K = J$, $D = 0.05J$ の場合について行った. 又, 平面格子サイズは 48×48 , 64×64 , 96×96 とし, 膜厚は $L_z = 2 \sim 6$ とした. D 及び K の値は実際の超薄膜磁性体のものに比べてまだ大きいか, 現在の計算機パワーではこのあたりが限界である.

3 結果

3.1 比熱及び磁化

膜厚 L_z を大きくしていくと $L_z \sim 4$ で磁気的性質が大きく変わることが分かった. 図1に $L_z = 3$ と $L_z = 5$ の比熱の温度依存性を示す. 薄い膜 ($L_z = 3$)

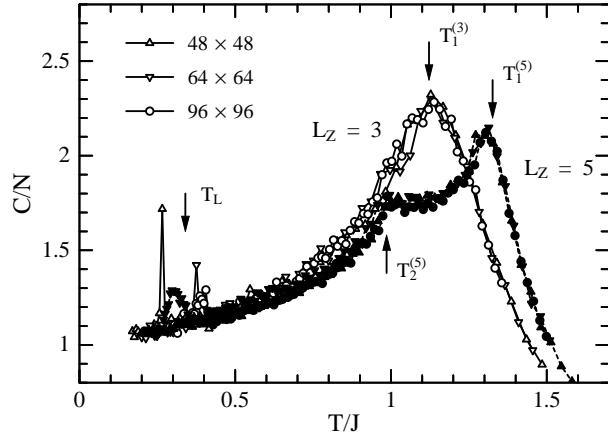


図 1: 比熱の温度依存性. 様々な平面格子サイズについて示してある.

では比熱は高温側 ($T_1^{(3)} \sim 1.1J$) に大きなピークを持ち、低温側 ($T_L \sim 0.4J$)

にスパイク状の小さなピークを持つ。これらのピークの平面格子サイズ依存性はほとんどない。このことは、 $T_1^{(3)}$ で磁気秩序が生じるが、この出現は連続的である（相転移ではない！）ことを示している。また、低温側 T_L でも磁気構造の変化が起こることを示している。これに対して、比較的厚い膜 ($L_z \geq 5$) では高温側 $T_1^{(5)} (\sim 1.3J)$, $T_2^{(5)} (\sim 1.0J)$ に2つのピークが見られ、高温領域で磁気構造の逐次的变化が起こっていることを示している。

図2に磁化の温度変化を示す。磁化の出現は厚い膜 ($L_z \geq 5$) でのみ認められ、その方向は膜面に平行である。磁化の成長は高温側のピーク温度 $T_1^{(5)}$ で始まり、低温側のピーク温度 $T_2^{(5)}$ で飽和に達する。このときの飽和値は通常の磁性体で期待される値の約 40% である。一般に比熱のピークは磁気秩序の発生に対応するが、この場合は逆である。このことは $T_2^{(5)}$ で面直成分の秩序（磁区）が発生していることを示唆している。一方、薄い膜 $L_z = 3$ では、 $T_1^{(3)}$ 以下で面直成分の磁区が形成されていると考えられる。

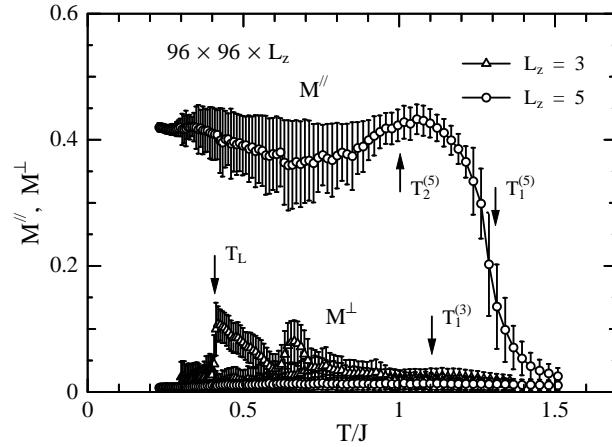


図2: 磁化の膜面に平行な成分 M^{\parallel} と膜面に垂直な成分 M^{\perp} の温度依存性。矢印は比熱にピークが見られる温度を示してある。

3.2 磁区 I : 膜厚依存性

図3に様々な膜厚 L_z の薄膜で見られた典型的な磁区模様を示す。図3 (a) - (e) は xy 面内のスピン構造を示し、図3 (f) は xz 面内のそれを示している。特徴は膜面に平行な成分は磁区を作らず膜面に垂直な成分が磁区を作ることで

ある。膜厚が小さいときはバブル状の磁区が見られ、大きいときはストライプ状の磁区になる。よく見てみると、スピンは磁区境界（磁壁）で格子面に平行に向く、しかも磁壁に沿った方向を取っている。すなわち、薄い膜でもプロッホ型の磁壁の出現が見られる。面白いことに磁壁も静磁エネルギーを下げるよう閉じたループを作っている。このように薄い膜でも複雑なスピン構造を持つ磁壁が生じていることは興味深い。

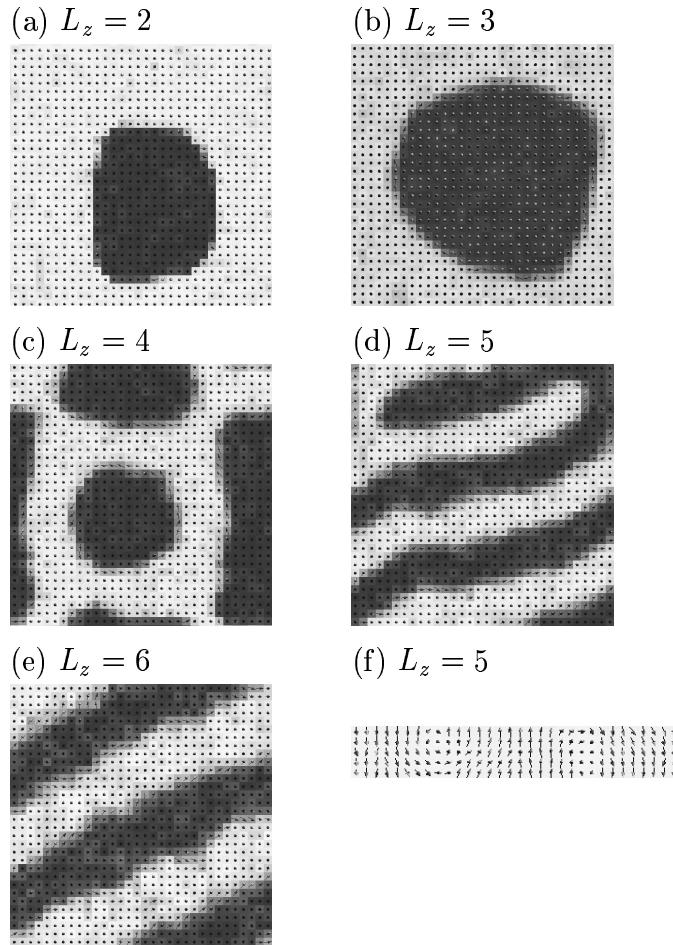


図 3: 様々な膜厚 L_z の積層薄膜の中心面におけるスピン構造のスナップショット、温度は $T \sim 0.5J$ 。各印は中心面 9 スピンの平均値を示している（ただし、(f) の z 方向は除く）。また、面直成分は明暗で、面内成分は矢印で示している。(f) は $L_z = 5$ の場合の断面の一部である。

3.3 磁区 II : 温度依存性

図4に薄い膜 ($L_z = 3$) の磁区構造の温度依存性を示す。比熱のピーク温度 $T_1^{(3)}$ 直下から面直成分 (S_i^\perp) の不規則な形をした磁区が出現していることが分かる。さらに温度を下げると磁区の形はバブル状に変わり、 T_L 以下の低温ではストライプ状になる。低温における比熱のスパイク状のピークはこの磁区構造の変化に対応している。これに対して、面内成分 (S_i^\parallel) の秩序化は低温でも認められない。

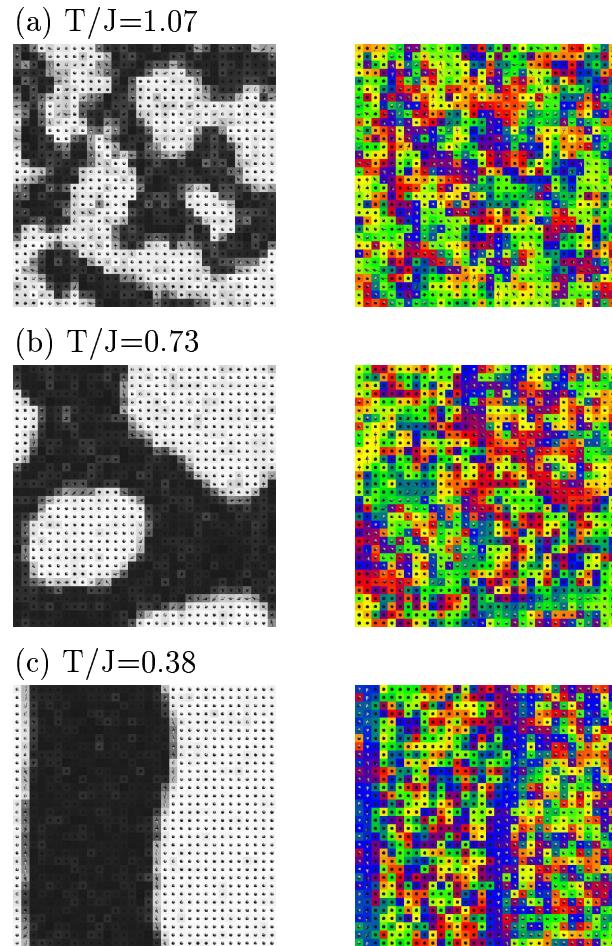


図 4: 薄い膜 ($L_z = 3$) の中心面のスピン構造のスナップショットの温度依存性。各矢印は中心面の 9 スピンの平均値。左図は面直成分を明暗で示したもの、右図は面内成分を色調と矢印で示したもの。比熱のピーク温度は $T_1^{(3)} \sim 1.1J$, $T_L \sim 0.4J$ である。

図5に比較的厚い膜 ($L_z = 5$) のスピン構造の温度依存性を示す。この場合は、比熱の第一ピーク温度 $T_1^{(5)}$ の下から面内強磁性秩序が始まっている。これに対して、面直成分の秩序は比熱の第二ピーク温度 $T_2^{(5)}$ 以下で起こっている。磁区の形状はストライプ型で温度が下がると共に明瞭になり、かつ幅が広がってくる。またストライプの方向は面内磁化 M^{\parallel} の方向と同じである。興味深い点は面内強磁性と面直磁区が発生する温度が異なることであるが、一度発生した面内磁化 M^{\parallel} は低温でも消失しない。すなわち、スピン再配列転移は再現されていらない。

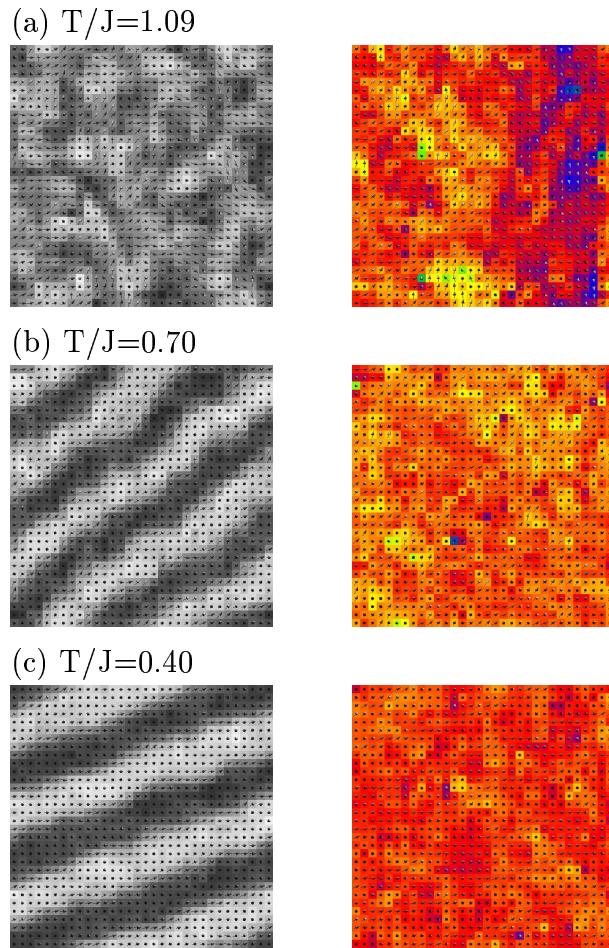


図5: 比較的厚い膜 ($L_z = 5$) の内部のスピン構造のスナップショットの温度依存性。各印は中心面の9スピンの平均値。左図は面直成分を明暗で示したもの、右図は面内成分を色調と矢印で示したもの。比熱のピーク温度は $T_1^{(5)} \sim 1.3J$, $T_2^{(5)} \sim 1.0J$ である。

4 まとめ

本小稿では、超薄膜磁性体の磁区構造研究の一端を紹介してきた。膜厚や温度によって変わる超薄膜の磁区構造の理論的研究はミクロなモデルを基にしたコンピュータシミュレーションによって初めて可能になったものである。また、超薄膜では表面乱れも無視できない。ミクロなモデルのシミュレーションにより、スピニ再配列転移がこの表面乱れに起因することも明らかになりつつある。今後ミクロなモデルのシミュレーション需要は益々高まっていくであろう。しかし、今のところ我々の扱える格子面のサイズは 100×100 (一辺数 $10nm$) 程度であり、実際の微小磁性体 (一辺 $1\mu m$ 程度) に比べて 2 衍ほど小さい。この問題を克服するにはアルゴリズムの更なる改良と計算機パワーの飛躍が必要である。前者は我々研究者一人一人の努力に負うものであるが、後者はコンピュータ産業、計算機センター等の研究支援機関の努力に負うものであり更なるご尽力を期待したい。平成 14 年暮れより東北大学情報シナジーセンターのスーパーコンピュータシステムが更新されて SX-7 になり、性能が 8 倍になる予定と聞いている(既に稼働中のことと思う)。これによって、更なる大規模シミュレーションに挑戦できることを楽しみにして筆を置きたい。

この超薄膜磁性体シミュレーションソフトウェアの開発には、情報シナジーセンターの岡部公起氏に多大の援助を戴いた。ここに深く感謝致します。

参考文献

- [1] R. Allenspach and A. Bischof: Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 3385.
- [2] M. Farle et al. : Phys. Rev. B **56** (1997) 5100.
- [3] J. Thomassen et al.: Phys. Rev. Lett.**69** (1992) 3831.
- [4] 例えば, R. Allenspash: J. Magn. Magn. Mater. **129** (1994) 160.
- [5] 例えば, J. H. J. van Opheusden and E. M. C. M. Reuvekamp: J. Magn. Magn. Mater. **88** (1990) 247.
- [6] 例えば, A. B. MacIsaac et al.: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 616.
- [7] 松原史卓, 鈴木伸夫, 佐々木淳哉: SENAC Vol.32 No.1 (1999.1).