

SQUIDとマイクロマグネティックシミュレーションを用いた磁気層間結合のパラメータ同定

黒川, 雄一郎
九州大学大学院システム情報科学研究所

田中, 輝光
九州大学大学院システム情報科学研究所

湯浅, 裕美
九州大学大学院システム情報科学研究所

<https://doi.org/10.15017/4763146>

出版情報 : 九州大学低温センターだより. 15, pp.2-6, 2021-03. Kyushu University Low Temperature Center

バージョン :

権利関係 :

SQUID とマイクロマグネティックシミュレーションを用いた

磁気層間結合のパラメータ同定

黒川雄一郎、田中輝光、湯浅裕美
九州大学システム情報科学研究所

1. はじめに

磁気層間結合は 2 層以上の磁性体を有する磁性多層膜においてしばしば発現する現象である。例えば、磁性体/非磁性金属/磁性体からなる 3 層膜では、上部の磁性体の磁化と下部の磁性体の磁化はある角度 θ をなして結合する。この角度は層間結合エネルギー E を用いて以下のように表せる[1-3]。

$$E = -J_1 \cos\theta - J_2 \cos^2\theta \quad (1)$$

ここで J_1 は bilinear 結合係数、 J_2 は biquadratic 結合係数である。

まず、式 1 において第 1 項は bilinear 結合と呼ばれるものを表しており、 J_1 が正の値をとっていると上下の磁性層は強磁性的に平行に結合し、 J_1 が負の値をとっていると上下の磁性層は反強磁性的に反平行に結合する。図 1(a)にその模式図を示す。bilinear 結合は、物理的には主に Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY)相互作用などによって説明される。RKKY 相互作用は金属中の伝導電子を介した磁気的な結合であり、距離に対して余弦関数的に振動する。これはフリーデル振動と呼ばれるものである。RKKY 相互作用によって説明できる bilinear 結合では、実際、非磁性金属の膜厚によって上下の磁性層結合が強磁性的から反強磁性的に振動的に変化する[4-6]。これは上記のフリーデル振動に起因する。このような bilinear 結合は、Magnetoresistive Random Access Memory (MRAM)などにおいて使用されており、例えば上下の磁性層を反強磁性的に結合することで、素子内に生じる余計な漏洩磁場を消去するために使用されている[7]。

次に、式 1 において第 2 項は biquadratic 結合と呼ばれるものを表しており、 J_2 が正の値をとっている限りは、互いの層の磁化を平行にする向きの方へ、一軸異方性のようにふるまうが、 J_2 が負の値になると互いに 90°磁化を回転させた方が安定になる特殊な結合である。図 1(b)に J_2 が負の時の結合の模式図を示す。biquadratic 結合の原因としては、非磁性金属層の原子レベルのステップによる磁気結合の揺らぎやバンド構造に起因したもの[8,9]、loose spin モデルなどが提案されている[1]。このような結合は磁気抵抗素子の固定層として利用されており、高い磁気抵抗率が観察されている[10]。

これらの結合は、bilinear 結合においてはその特性が広く研究されており、比較的よく理解されている。 J_1 を導出する方法も確立されたもので

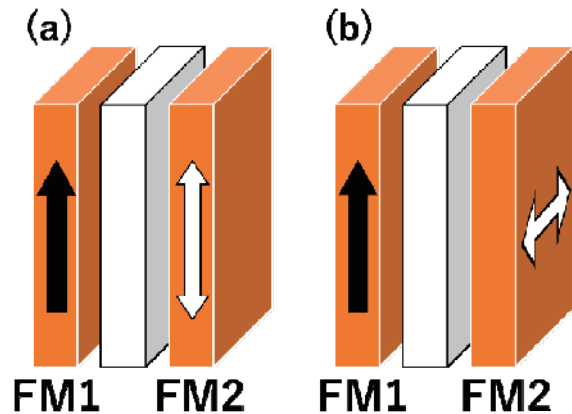


図 1 強磁性層 1 (FM1) と強磁性層 2 (FM2) の
(a) bilinear 結合と (b) biquadratic 結合の模式図

ある。例えば振動型磁束計や磁気抵抗効果などにおいて、一方向に磁場を印可し、飽和する磁場から J_1 が求められている[6, 11]。一方で、biquadratic 結合においては、あまり広く研究されておらず、その起源にも上記のようにいろいろなモデルが提唱されており、不明な点が多い。また、層間結合は磁性体/非磁性金属/磁性体からなる3層膜で発現するため、原理的にこの二つの層間結合が同時に出現する可能性が高い。したがって、この J_1 と J_2 を分離し、それぞれ求めることは、層間結合の起源をより一層明らかにするために必須である。本研究では、マイクロマグネティックシミュレーションと超伝導量子干渉計(SQUID)による高感度磁化測定を利用して、 J_1 と J_2 を求めた。

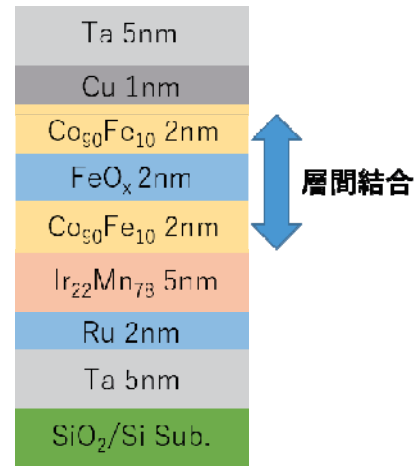


図2 試料の膜構成

2. 実験方法

本研究では J_1 と J_2 を求める手法として、層間結合を有する膜に対して大きな磁場を印可することで、磁化が飽和したときの磁化曲線を求め、そこから J_1 と J_2 を見積もった。層間結合を有する膜に対し、強い磁場を印可すると磁化は磁場の方向へ揃おうとするが、その際、層間結合を切断する必要が発生するため、この切断が発生した磁場、飽和磁場を含めた磁化曲線を求めることで J_1 と J_2 を求めることが可能である。しかしながら、層間結合を有する薄膜に対し強い磁場を印可すると基板の反磁性などが強く表れるため、ノイズに対する耐性を高めるために高感度な磁化測定が必要である。そのため今回、最も高感度な磁化測定が可能である装置、SQUID を用いてこの磁化曲線を求めた。次に、測定した試料について説明する。測定した試料の膜構成を図2に示す[12]。試料はスパッタ法により成膜した。成膜後、試料は磁場中で熱処理されており、層間結合に用いる下部強磁性層 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ は IrMn からの交換バイアスにより、磁場中熱処理の磁場方向にピン止めされている。非磁性中間層としては Fe をスパッタ後 O_2 ガスを用いて、十分に酸化させたものを用いている。この試料を SQUID を用いて磁化測定を行うことでその磁化曲線を求めた。

次に、得られた磁化曲線を利用して J_1 と J_2 を求める。求める手法としては J_1 と J_2 が任意の値を持つときにどのような磁化曲線が得られるかをマイクロマグネティックシミュレーションを用いて求め、両者を比較することによって同定した。ここで、マイクロマグネティックシミュレーションの方法について説明する。マイクロマグネティックシミュレーションにおける磁化の運動は、以下に示すランダウリフシツギルバード(LLG)方程式を時間発展させることにより求められる：[13]

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) \quad (2)$$

\mathbf{M} は磁化のベクトルであり、 M_s は飽和磁化、 γ はジャイロ磁気定数、 α はダンピング定数である。ここで、 \mathbf{H}_{eff} は磁化に有効な磁場であり、各磁場成分の一時結合を用いて以下のようにあらわされる[12]。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_{\text{an}} + \mathbf{H}_{\text{ex}} + \mathbf{H}_{\text{app}} + \mathbf{H}_{\text{st}} + \mathbf{H}_{\text{bl}} + \mathbf{H}_{\text{bq}} \quad (3)$$

ここで、 H_{an} は異方性磁場、 H_{ex} は交換結合磁場、 H_{app} は外部磁場、 H_{st} は静磁場、 H_{bl} は bilinear 結合磁

場、 H_{bq} は biquadratic 結合磁場である。 H_{bl} と H_{bq} は ij 層の規格化磁化 m_i と m_j を使うことにより、以下のようにあらわされる[14]。

$$H_{\text{bl}}^i = \frac{J_1}{M_s^i d_i} m_j \quad (4)$$

$$H_{\text{bq}}^i = \frac{2J_2}{M_s^i d_i} \begin{bmatrix} m_x^i m_x^j + m_x^j (m_y^i m_y^j + m_z^i m_z^j) \\ m_y^i m_y^j + m_y^j (m_x^i m_x^j + m_z^i m_z^j) \\ m_z^i m_z^j + m_z^j (m_x^i m_x^j + m_y^i m_y^j) \end{bmatrix}, \quad i \neq j \quad (5)$$

ここで、 d_i は i 層の膜厚、 M_s^i は i 層の飽和磁化である。この計算では、強磁性層/非磁性中間層/ピン止め強磁性層の3層を仮定して計算を行った。ここで、ピン止め層のみに40mTの外部磁場を導入することによりIrMnの交換バイアスが印可されていることを表現した。1セルのサイズを、10nm×10nm×2nmに定め、総セル数を30×30×3とした。ジャイロ磁気定数は $\gamma=1.76 \times 10^{11} \text{ rad s}^{-1} \text{ T}^{-1}$ 、計算ステップは $1 \times 10^{-14} \text{ sec}$ を用いた。

3. 実験結果

図3(a)にSQUIDで測定した磁化曲線の結果を示す。磁場の印可方向は下部層の交換バイアスと同じ方向としている。測定結果から300mT程度で磁化が飽和することがわかる。したがって、300mT程

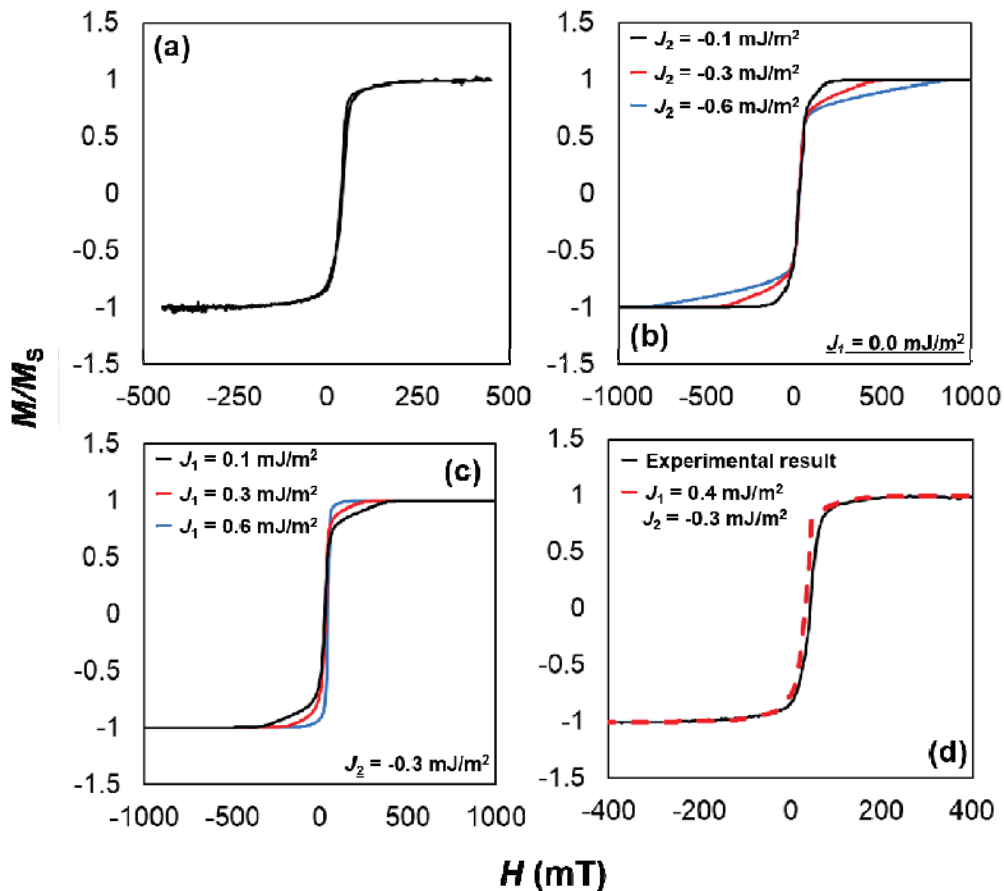


図3 SQUIDによる磁化測定の結果とマイクロマグネティックシミュレーション結果

度の磁場を印可することによって、層間結合が切れ、すべての層の磁化が同じ方向へ揃うことがわかる。

次に、マイクロマグネティックシミュレーションを用いて J_1 と J_2 の値を変化させながら磁化曲線を求めた結果を示す。まず、 J_1 の値を 0 mJ/m^2 に固定し、 J_2 の値を $-0.1 \sim -0.6 \text{ mJ/m}^2$ まで変化させた磁化曲線を図 3(b) に示す。 J_2 の値を負に大きくするにしたがって、飽和する磁場が大きくなることがわかる。これは、biquadratic 結合が強くなるために、一方向へ磁化が整列するまでに必要な磁場が増大するためである。次に、 J_2 の値を -0.3 mJ/m^2 に固定し、 J_1 の値を $0 \sim 0.6 \text{ mJ/m}^2$ と変化させた磁化曲線を図 3(c) に示す。結果から、 J_1 の値が大きくなるにしたがって飽和磁場が減少することが分かった。これは、下部層との磁化の相対角が $\cos\theta = -J_1/2J_2$ によって決定されるため、 J_2 が負の値を持つときかつ J_1 が有限の値を持つ場合は、上部と下部の磁化は相対角 90° からずれることになる。これにより、見かけの biquadratic 結合が弱められ、飽和する磁場が低下するのだと考えられる。

最後に、マイクロマグネティックシミュレーションの結果と実験結果を比較することによって J_1 と J_2 を同定した。様々な J_1 、 J_2 条件でシミュレーションを行ったところ、 $J_1 = 0.4 \text{ mJ/m}^2$ 、 $J_2 = -0.3 \text{ mJ/m}^2$ の時に最もよく実験結果とシミュレーション結果が一致することがわかった。その結果を図 3(d) に示す。したがって、今回の試料は $J_1 = 0.4 \text{ mJ/m}^2$ 、 $J_2 = -0.3 \text{ mJ/m}^2$ の値を有することが示された。

4. まとめ

bilinear 結合および biquadratic 結合などの層間結合の詳しい物性を明らかにするために、磁性体/非磁性金属/磁性体からなる 3 層膜を作製し、SQUID を用いた磁化測定とマイクロマグネティックシミュレーションから bilinear 結合係数 J_1 と biquadratic 結合係数 J_2 を求めた。その結果、今回用いた構成の膜では $J_1 = 0.4 \text{ mJ/m}^2$ 、 $J_2 = -0.3 \text{ mJ/m}^2$ の時に最もよく実験結果とシミュレーション結果が一致することがわかった。

謝辞

本ノートは雑誌論文に投稿したものの一部について解説したものです[12]。SQUID を用いた磁化測定では、九州大学工学研究院 河江達也准教授、稲垣祐次助教にご協力頂きました。感謝いたします。また、本研究に関わったすべての方々に感謝申し上げます。

参考文献

- [1] J. C. Slonczewski, J. Appl. Phys. **73**, 5957 (1993).
- [2] H. Wang, A. Sato, K. Saito, S. Mitani, K. Takanashi, and K. Yakushiji, Appl. Phys. Lett. **90**, 142510 (2007).
- [3] M. Inoue, K. Inubushi, D. Mouri, T. Tanimoto, K. Nakada, K. Kondo, M. Yamamoto, and T. Uemura, Appl. Phys. Lett. **114**, 062401 (2019).
- [4] S. S. P. Parkin and D. Mauri Phys. Rev. B **44**, 7131(R) (1991).
- [5] S. S. P. Parkin Phys. Rev. Lett. **67**, 3598(1991).
- [6] K. Inomata and Y. Saito, J. Magn. Magn. Mater., **126** 425 (1993).
- [7] J. L. Leal and M. H. Kryder J. Appl. Phys. **83**, 3720 (1998)
- [8] J. C. Slonczewski, Phys. Rev. Lett., **67** 3172 (1991).
- [9] P. Bruno., J. Magn. Magn. Mater., **121** 248 (1993).
- [10] H. Fukuzawa, K. Koi, H. Tomita, H. N. Fuke, H. Iwasaki, and M. Sahashi, J. Appl. Phys. **91**, 6684 (2002).

- [11] K. Yakushiji, A. Sugihara, A. Fukushima, H. Kubota, and S. Yuasa, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 092406 (2017).
- [12] G. Nagashima, Y. Kurokawa, Y. Zhong, S. Horiike, D. Schönke, P. Krautscheid, R. Reeve, M. Kläui, Y. Inagaki, T. Kawae, T. Tanaka, K. Matsuyama, K. Ohnishi, T. Kimura, and H. Yuasa, *J. Appl. Phys.* **126**, 093901 (2019).
- [13] D. Kumar and A. O. Adeyeye, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 343001 (2017).
- [14] M. Belmeguenai, T. Martin, G. Woltersdorf, M. Maier, and G. Bayreuther, *Phys. Rev. B* **76**, 104414 (2007).