

研究課題名

$L1_0$ FePt系規則合金薄膜を用いた強磁性-反強磁性ドットアレイの作製と磁気特性

研究代表者名

秋田大学・工学資源学部・石尾俊二

研究分担者名

秋田大学・工学資源学部・長谷川崇
秋田大学・大学院工学資源学研究科・成澤貴大

1. はじめに

ビット・パターン・メディア (BPM) は2Tbit/inch²を超える超高密度磁気記録媒体として期待され、その作製には電子ビームリソグラフィーを用いた微細加工や微粒子の自己組織化等を中心に様々な手法が試みられている。しかしながら、微細加工では加工から埋め込み・平滑化まで多くの加工工程が必要であり、生産コストも高い。また微細加工プロセスで生ずる加工ひずみに起因する磁気特性の劣化およびそれによって生じるBPM中の大きな反転磁場分布も問題である。また微粒子を化学プロセスによって自己組織化配列させる手法では、大面積に粒子を規則配列する必要がありその実現には多くの困難が予想される。このような技術的問題を解決する手法として、イオン照射を用いたBPM作製が注目されている。同手法は、加工・埋め込み・平滑化という複雑な微細加工工程を必要とせず、経済性に優れた手法である。また新たなBPM材料として、大きな結晶磁気異方性を有する $L1_0$ FePt系規則格子薄膜実用性が注目される。同規則格子薄膜はRhやIrの添加によって容易に強磁性から反強磁性へと変態する。本研究は、一括イオン照射/熱拡散によって $L1_0$ FePt系強磁性-反強磁性型ドットアレイを作製し、記録媒体としての実用性を評価することを目的としている。

2. 研究経過

FePtRh系材料の基礎物性評価を実施し、以下の検討を行った。

- (1) 酸化物添加によるFePt高規則化・高配向膜の作製法の検討
- (2) 強磁性-反強磁性相転移現象の確認と磁気相図の作製
- (3) 熱拡散法によるドットアレイパターンの試作

3. 研究成果

- (1) 酸化物添加によるFePt高規則化・高配向膜の作製法の検討

厚さ約10nmの高規則化・高配向膜は酸化物添加、高速加熱熱処理によって作製した。図1にSiO₂添加を行った場合のX線回折図並びに断面TEM観察の結果を図2に示した。 $L1_0$ 構造の規則度は90%以上の値を示し、しかも膜面垂直方向に(001)配向している様子がわかる。またFe₂O₃、CuOを添加した場合も類似した結果が得られた。

- (2) 強磁性-反強磁性相転移現象の確認と磁気相図の作製

Fe₅₀(Pt_{1-x}Rh_x)₅₀三元合金の飽和磁化並びに磁気異方性のRh濃度依存性を図3に示す。Rhの添加とともに磁化は僅かに低下し、 $x=0.3$ で急速に消失する。 $x=0.3$ 付近で強磁性から非強磁性へと変化している。またPtの磁気モーメントも同様の変化を示すことが放射光を用いXMCDからも示されており、強磁性から反強磁性へと変化しているものと考えられる。図3右には、H_c並びにH_kの値を示しているが、 x が0.3以下で $2\sim 7 \times 10^7 \text{erg/cm}^3$ の高い結晶磁気異方性を示しており、ビット・パターン・メディア材料として有望である。

- (3) 熱拡散法によるドットアレイパターンの試作

熱拡散法によりFePtRhドットアレイを作製した。その磁気力顕微鏡観察の結果を図4に示す。

4. まとめ

本年度は $L1_0$ FePt系ドットパターンの作製をめざして、高規則化・高配向膜の作製法の検討を行いSiO₂の添加によって優れた高規則化・高配向膜が作製できることを示した。次いで磁気特性の評価を行い、作製した $L1_0$ FePtRh系薄膜が高結晶磁気異方性を有しBPM材料としても適していることを明らかにした。また、ドットアレイの試作を行い、300nmクラスのドットパターンを作製し、磁気力顕微鏡による磁区観察を行った。次年度も研究を継続し、更に微細なパターン作製を継続する予定である。

参考文献

T. Hasegawa, J. Miyahara, T. Narisawa, S. Ishio, H. Yamane, Y. Kondo, J. Ariake, S. Mitani, Y. Sakuraba, K. Takanashi, "Study of ferro-antiferromagnetic transition in [001]-oriented $L1_0$ FePt_{1-x}Rh_x film", J. Appl. Phys., Vol. 106, p. 103928 (2009)

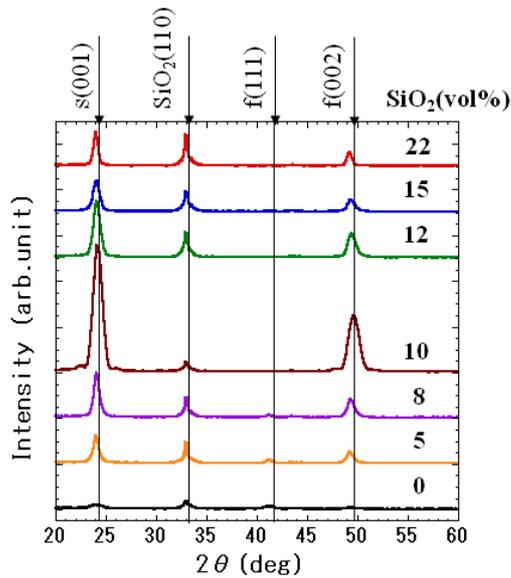


図1 FePt-SiO₂ 薄膜の θ - 2θ X線回折図

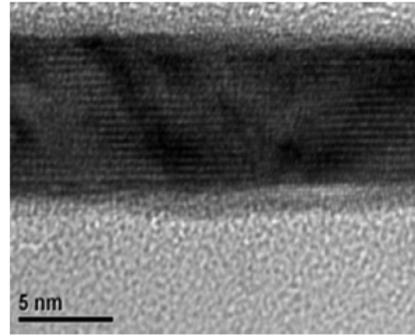


図2 FePt-SiO₂ 薄膜の断面 TEM 写真

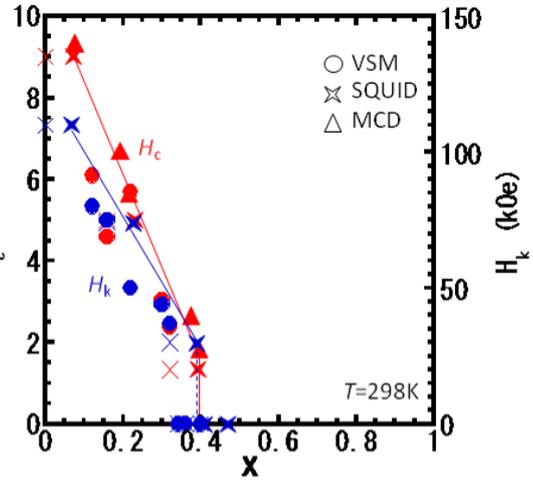
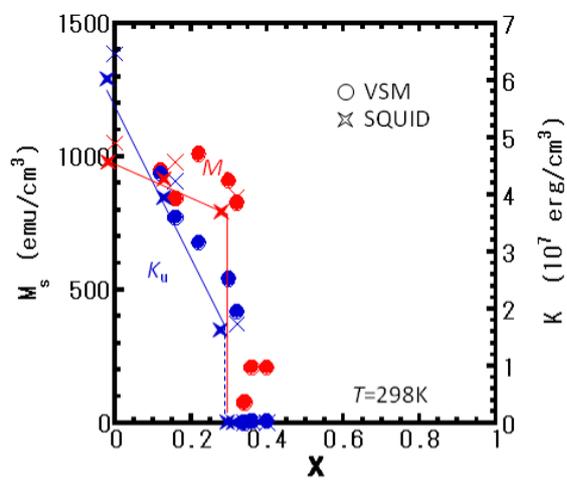


図3 SiO₂ 添加によって作製した Fe₅₀(Pt_{1-x}Rh_x)₅₀ 合金薄膜の磁気特性

In-field MFM

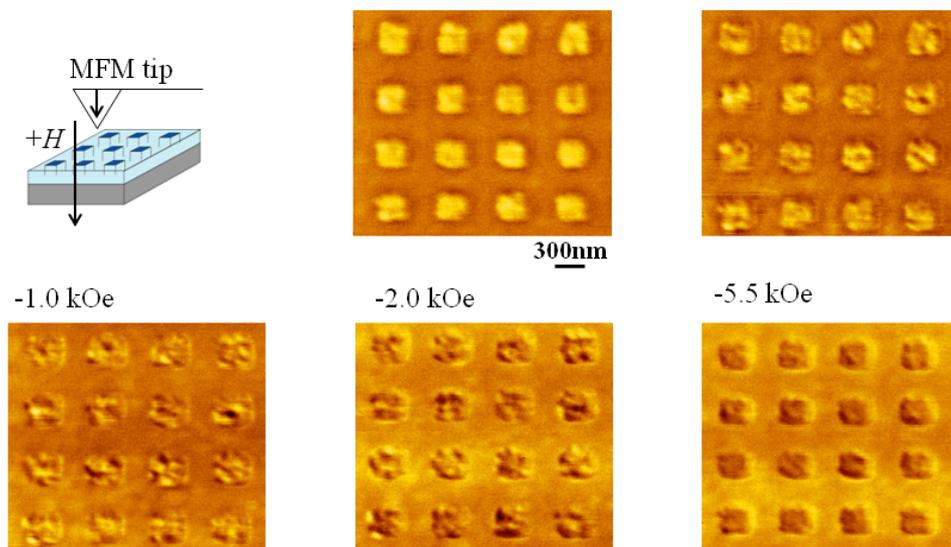


図4 FePtRh ドットアレイの磁場中磁気力顕微鏡観察

強相関電子系の熱電応答に関する理論的研究

研究代表者名

理化学研究所・交差相関理論研究チーム・小椎八重 航

1. はじめに

電場が電流を駆動するように、温度勾配もまた、電流を導く。電流が流れれば、熱も流れる。こうした電場や温度勾配などの外力に駆動される固体中の流れは、エネルギー緩和と共にある。外力と流れそしてエネルギー緩和の絡み合いのなかに、固体電子の外場応答は位置している。電子間に働く強いクーロン相互作用は、例えば磁性の起源を与えるように、電子の内部自由度を引き出し、多彩な外場応答を導く電子状態を築き上げる。本研究では、電子相関を含む系における熱電応答における電子の内部自由度の役割を調べた。

2. 研究経過

遷移金属酸化物に代表される多くの強相関電子系は、磁気秩序を示す。この秩序状態の中を電子は運動する。この運動を記述する有効モデルとして、我々は、いわゆる二重交換モデルを採用し、数値的に時間発展を追うことで電子系の外場応答を調べた。このモデルでは、電子と結合する局在スピンの古典的自由度として扱われる。この古典的自由度の運動方程式として、磁気モーメントの運動を記述する基本方程式であるLandau-Lifschitz-Gilbert (LLG)方程式を採用した。本研究では、量子力学的自由度(電子)と古典力学的自由度(局在スピン)の結合した方程式の解法を開発し、電子の励起と緩和の問題を明らかにした。

また、貴研究所の前川グループと共同で、ハバードモデルを用いた強相関電子系の熱電応答の研究も行った。この計算手法として、動的平均場理論を採用し、特に低温での熱起電力の磁場効果に焦点を当て研究を進めた。

3. 研究成果

我々は、二重交換モデルを用いた数値的研究を通して、励起した電子の緩和過程に新しい機構を見出した。すなわち、量子力学的なエネルギー準位の間を電子が遷移する際、その準位間のエネルギー差に相当するエネルギーを電子は失う。このエネルギーは局在スピンの際差運動を駆動する。この局在スピンの運動と電子遷移は、互いに再帰的に影響し合う。すなわち、局在スピンの運動は電子のエネルギー準位の構造を変化させ、電子遷移により電子が失うエネルギーを変化させる。この電子が失うエネルギーはまた、局在スピンの駆動力となっているのである。この電子状態と局在スピンの連携した挙動は、共鳴状態を作り上げ、緩和過程の基礎を与える。

ハバードモデルを用いた、強相関電子系の熱電応答に関する結果も極めて興味深い。熱起電力の高温での振舞いは、研究代表者が導いた熱起電力の公式により把握される漸近的な振る舞いが見られた。また、低温での熱起電力の磁場効果は、電子間のクーロン斥力が大きくなるに従い強調されていく様子が見られた。これは、強い電子相関により、熱電応答に有効な準粒子のバンドの幅が強く抑制されることに起因することが明らかとなった。

4. まとめ

電子系の熱電応答の研究は、非平衡状態、すなわち、外場による電子系の励起とエネルギー緩和の問題に根ざしている。理論的手法の進展と計算機の発展は、過去困難とされた量子力学的自由度のエネルギー緩和の問題に対して、挑戦の糸口を与える。本研究で明らかとなった、電子遷移とスピンの動的共鳴現象に伴う緩和過程は、しばしば磁気秩序状態を伴う強相関電子系に一般的なものと考えられる。準粒子バンドの強い繰り込みもまた、強相関電子系の特徴である。これに起因して外場応答が強調される機構の理解は、強相関電子系における熱電応答の物理の根幹を成すものとする。

特異な幾何構造をもつ量子スピクラスタの磁気構造の研究

筑波大学・数理物質科学研究科・大塩寛紀

東北大学・金属材料研究所・野尻浩之、筑波大学・数理物質科学研究科・二瓶雅之、
星野哲久、三ツ元清孝、大貫達也、松本卓士、吉田典史

1. はじめに

多数の常磁性金属イオンからなる量子スピン多核クラスターの磁気的性質は、その幾何構造に大きく影響を受ける。現在の量子スピン系に関する研究の多くは対称性をもつ物質系に関する研究が殆どであり、奇数個の金属イオンからなる環状化合物やキラルな構造をもつ量子スピクラスタに関する研究例は少ない。対称性をもたない金属イオンの配列をもつ金属多核クラスターにおいては、キラルなスピン配列に起因する新規な物理的性質の発現が期待される。これらの対称性の破れに起因する新しい物性を開拓するには、クラスター分子の幾何構造の精密制御を可能とする合理的クラスター分子合成法の確立と新しい系の創出、さらにその系統的基礎研究が重要である。本研究では、有機配位子を論理的に設計することで、奇数員環多核クラスターやキラル多核金属錯体を合成し、それらの磁気的性質について明らかにすることを目的とした。

2. 研究経過

我々は量子スピン金属多核クラスターの合理的合成法を確立し、キューブなどの特異な幾何構造をもつナノサイズのスピクラスタや異核金属多核クラスターを合成してきた (H. Oshio et al, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2008**, 4851-4855.)。さらに、これまでの野尻浩之担当教授との共同研究により、Mn(III)-Ln ヘテロメタル 6 核錯体における単分子磁石挙動などについて明らかにした (H. Oshio et al, *Inorg. Chim. Acta* **2008**, 14-15, 4113-4117)。また、20 年度の共同利用研究では、有機環状化合物であるシクロデキストリンをテンプレートとして利用した新規環状クラスター合成法を確立した。その結果得られた、奇数員環状バナジル 7 核錯体 $\text{Na}_6[(\text{VO})_7\text{Na}_7(\beta\text{-CD})_7(\text{H}_2\text{O})_7] \cdot n\text{H}_2\text{O}$ について磁化測定を行い、ゼロ磁場付近でスピנקラリティーに起因するトンネリングと思われる、特異な緩和課程を観測した。奇数個の金属イオンからなる環状化合物において期待される対称性の破れに起因する新しい物性を開拓するには、類似化合物に関する系統的基礎研究が重要である。そこで本年度の共同利用研究では、比較対照実験として VO6 核錯体 $\text{Na}_6[(\text{VO})_6\text{Na}_6(\alpha\text{-CD})_6(\text{H}_2\text{O})_6] \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (**1** ; stacked packing, **2** ; separated packing)、および VO8 核錯体 $\text{Na}_8[(\text{VO})_8\text{Na}_8(\gamma\text{-CD})_8(\text{H}_2\text{O})_8] \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (**3** ; stacked packing, **4** ; separated packing) を合成し、HF-EPR 測定によって異方性がほとんどゼロであることを確かめ、*g* 値を精密に決定した。

3. 研究成果

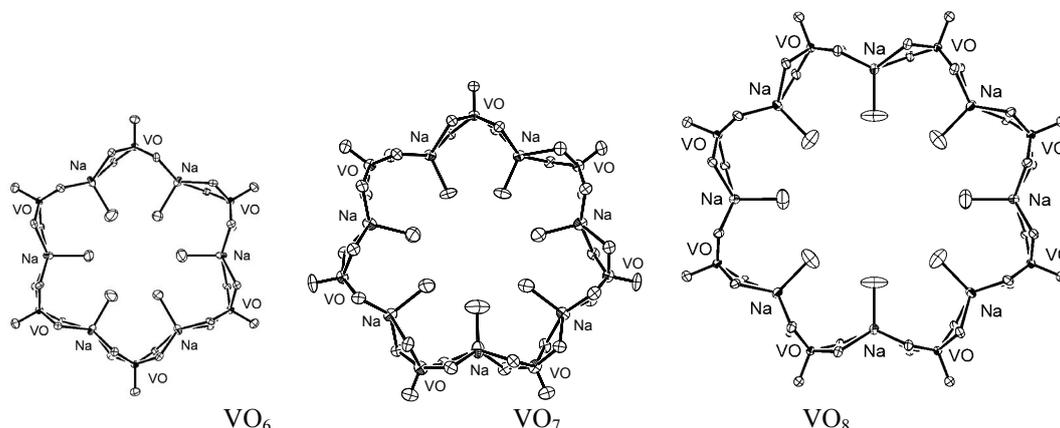


図 1. 環状バナジル多核錯体のコア構造.

1 は文献に従い合成した (Poitrowski et al. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2005**, 44, 924.)。硫酸バナジルと $\alpha\text{-CD}$ を水中で反応させ、アセトンを拡散させることで青色板状結晶 **1** を得た。またアセトンの代わりにメタノールを拡散させることで、青色柱状結晶 **2** を得た。さらに、 $\alpha\text{-CD}$ の代わりに $\gamma\text{-CD}$ を用いることで、それぞれ青色板状結晶 **3** および青色プリズム状結晶 **4** を得た。

1 は Hexagonal $P622$ に結晶化し、分子内に結晶学的な 6 回軸を持つ。すべてのバナジルイオンは結晶学的に等価であり、V 原子はすべて正六角形の頂点の上に存在する。**2** は $P2_12_12$ に結晶化した。分子内には

2 回軸が存在し、結晶学的に独立な V 原子は 3 種類あり、正六角形構造である **1** よりも歪んでいる。**1** は結晶中で分子が *c* 軸方向にスタックしているのに対して、**2** は分子が結晶中でのスタッキングはみられない。**3** は C_{222} に結晶化した。分子内に互いに直交した 2 回軸が 2 つ存在するため、結晶学的に独立な V 原子は 2 種類のみである。**4** は C_{222_1} に結晶化した。分子内には 2 回軸が 1 つ存在し、独立な V 原子は 4 種類である。**4** は **3** よりも正八角形から歪んでいるといえる。**3** は結晶内で分子がスタックしているが、**4** ではスタッキングはみられない。

1 の温度依存磁化率測定の結果(図 2 左)、バナジリウム間には非常に弱い反強磁性的相互作用が働くことが明らかとなった。また、1.8 K における磁化曲線を解析した結果、**1** におけるバナジリウム間の磁氣的相互作用は、 $J = -0.32$ K と見積もられた。**2 - 4** についても検討した結果、全ての錯体がほぼ同様の磁気挙動を示すことが分かった。

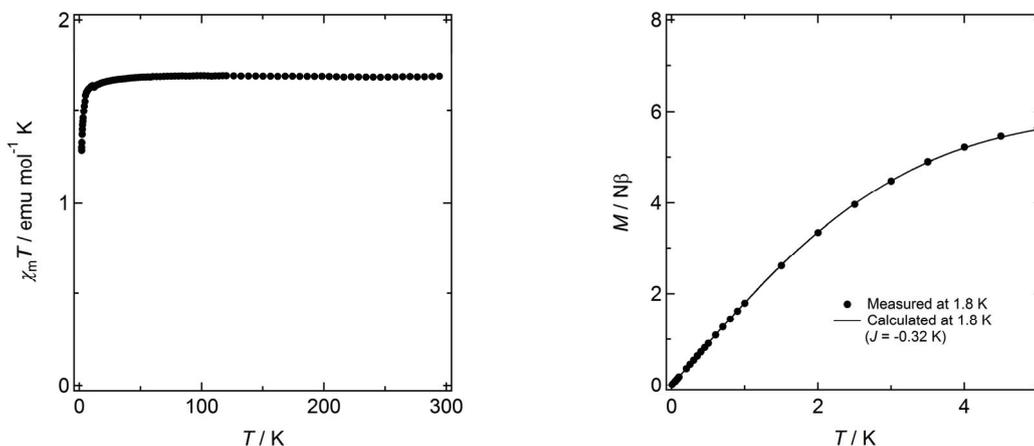


図 2. 6 核錯体 **1** の $\chi_m T$ vs. T プロット (2 Tesla) および磁化曲線 (1.8 K).

錯体 **1 - 4** の HF-EPR スペクトルを測定した。まず錯体 **1** について、1 つの結晶を 6 員環に対して磁場が垂直になるようにマウントして測定した結果(図 3 上)、バナジリウムのスピン $S = 1/2$ に起因する一重線が観測された。また、2 つの結晶を、それぞれ 6 員環に対して垂直および平行になるようマウントして測定した結果(図 3 下)、半値幅の変化が殆ど観測されず、錯体 **1** における磁気異方性がほぼゼロであることが判明した。2 K における錯体 **1 - 4** の HF-EPR スペクトルを図 4 に示す。**1 - 4** のスペクトルから、各錯体の g 値はそれぞれ、**1**: $g = 1.970$ 、**2**: $g = 1.972$ 、**3**: $g = 1.968$ 、**4**: $g = 1.970$ と見積もられた。

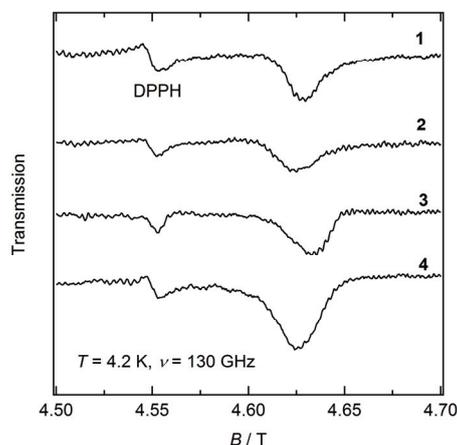
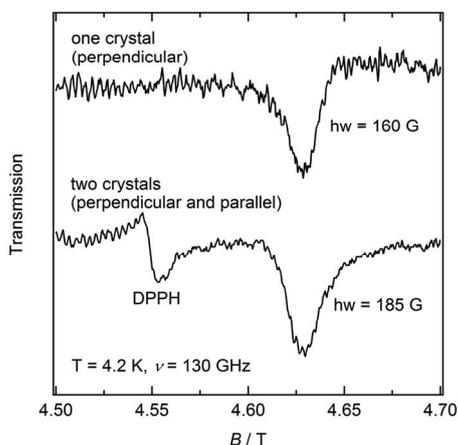


図 3. 6 核錯体 **1** の HF-EPR スペクトル. 図 4. 錯体 **1-4** のスペクトルの比較.

4. まとめ

本研究においては、奇数員環状多核錯体における特異な幾何構造に基づく新奇な磁氣的性質の探索を目的とし、異なる員数をもつ環状多核錯体の合成とその基礎的磁性的の解明を行った。その結果、昨年度報告した奇数員環状 VO7 核錯体合成法を拡張することで、新たに偶数員環状 VO6 核錯体 **1**、**2**、および VO8 核錯体 **3**、**4** の合成に成功した。磁氣的性質について検討した結果、全ての錯体は、弱い反強磁性的相互作用を示す反強磁性リングクラスターであることが分かった。また、HF-EPR 測定により磁気異方性について明らかにした。今後、極低温におけるパルス磁化測定等を行うことで、磁気構造と分子の幾何構造の創刊について詳細に検討し、新規物性の探索を行う。

走査型トンネル顕微鏡で探る高スピン偏極磁性合金薄膜の表面状態とスピン依存伝導

大阪教育大学・教育学部・川越 毅

東北大学・金属材料研究所・水口将輝、高梨弘毅
物質材料研究機構 三谷誠司

1. はじめに

本研究は申請者がこれまで開発・蓄積してきたスピン偏極STMの手法を用いて高スピン偏極材料の形状構造・磁気構造・スピン依存伝導・表面スピン偏極電子状態との相関をナノ領域で調べることである。これまでのスピン流・スピン依存伝導の研究は薄膜試料を微細加工した固体デバイスを用いた（サブ）ミクロン領域の観測が主流である。これに対して本研究の特徴は、強磁性探針を用いたスピン偏極STMの手法を用いることであり、1) ナノ構造(原子配置)、磁気構造、スピン偏極表面状態が同時にかつナノ領域（原子レベル）で調べられる 2) 理想的な真空バリアを介しての電流注入磁化反転の観測などのスピン依存伝導の実験もナノ領域以下の局所領域で行うことができる などの利点を持つ。そこで高品位な磁性合金薄膜作成とそのデバイス応用で世界的な業績を上げている高梨教授グループから観察試料を提供してもらい、研究の効率的な推進を行うことが本申請の目的である。昨年度より L_{10} FePt(001)規則合金薄膜に研究対象をしぼり共同研究を行っている。また高梨教授グループによりAu/FePt系で巨大スピンホール効果の観測など多くの興味深い成果が得られている系である。しかし、その表面構造や電子状態などに関する詳細な研究がほとんどなされていない。

2. 研究経過

FePt(001)薄膜の作製は、超高真空スパッタ装置を用い東北大金研で行った。具体的にはMgO(001)単結晶基板上に薄膜組成が $Pt_{58}Fe_{42}$ になるように同時スパッタ、基板温度 $650^{\circ}C$ で作製することにより、 L_{10} 規則合金薄膜(100nm)を作製し、RHEEDによってエピタキシャル成長と清浄表面を確認後、大気中に試料をとりだした。大阪教育大学に設置されている超高真空MBE/STM装置($<5 \times 10^{-11}$ Torr)をもちいて清浄表面を作製後、STM・STS観察・LEED測定を行った。

これまでの研究でAr圧 1×10^{-5} Torrで20分エッチング後、 $450^{\circ}C$ のアニールを超高真空下($<1 \times 10^{-10}$ Torr)で20分行い、このプロセスの2回以上繰り返すことによって清浄表面が作製可能なことを明らかにしている。昨年度までの共同研究で $400^{\circ}C$ 以上のアニールによって原子レベルで平坦なテラスが形成され、その試料のラインプロファイルから単原子層の高さを調べた結果、2つの異なる高さ： $2.10(\pm 0.15) \text{ \AA}$ 、 $1.70(\pm 0.15) \text{ \AA}$ の2種類が観測され、両者の和は 3.80 \AA であり、この値はFePt L_{10} 規則相のc軸格子定数と一致することを報告した。また、STMを用いたバリアハイト（仕事関数）像の測定を試みた。本年度はLEEDを用いた面内の格子定数の観測とトンネルスペクトル（STS）によって試料表面の局所状態密度を調べた。

3. 研究成果

図1aにAr⁺エッチング、 $450^{\circ}C$ アニールの繰り返し後の試料表面のSTM像を示す。原子レベルで平坦なテラスが形成されており、そのテラス幅は10~30nmである。ラインプロファイルから単原子層の高さを調べた結果、昨年度と同様にA： $2.10(\pm 0.15) \text{ \AA}$ 、B： $1.90(\pm 0.15) \text{ \AA}$ の2種類が確認できた。図1bにはFePt(001)清浄表面のLEEDパターンを示す。明瞭なp(1×1)構造を示すスポットが観察されている。観察された表面の格子定数は $2.71 \pm 0.05 \text{ \AA}$ ($3.83 \pm 0.007 \text{ \AA}$)であり、この値はFePt L_{10} 規則相のa軸格子定数 3.846 \AA とほぼ一致する。

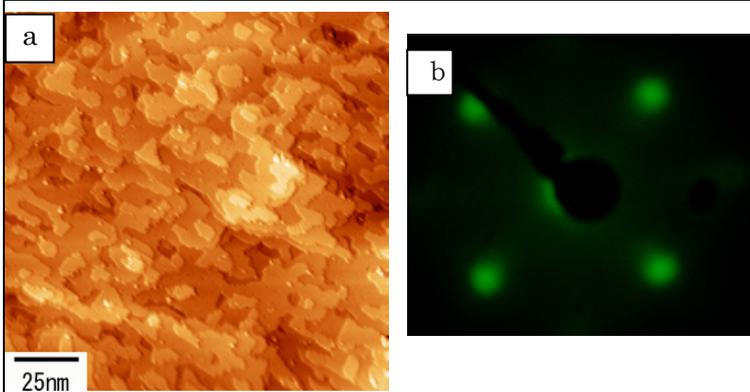


図1 : FePt(001)薄膜清浄表面の
a) STM像と b) LEEDパターン

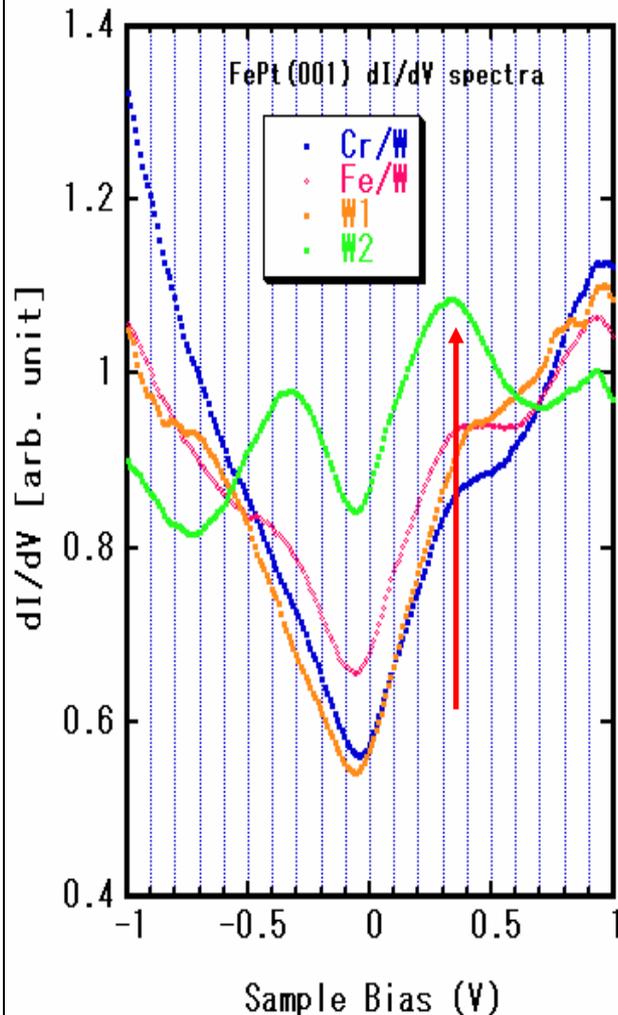


図2にはW探針およびW探針にCrとFeを蒸着した薄膜探針を用いて測定したトンネルスペクトルを示す。探針の種類によってスペクトルの強度は異なるが、どの探針でも+0.35V付近には明瞭なピークが観察されている。これらはFePt(001)清浄表面のスピンの偏極表面準位によるものと考えられる。しかし最表面がFe層あるいはPt層のどちらであるのか または最表面がFe層とPt層の場合とで違いがあるのかどうかなど、基礎的な情報が明らかにはなっていない。現在これらの解釈を検討しているとともに、今後はこれらを明瞭に検証する実験を計画している。具体的にはPt(001)清浄表面と単原子層Fe蒸着後のトンネルスペクトルを比較することを計画しており、現在もその準備と予備実験を行っている。

4. まとめ

$L1_0$ FePt(001)規則合金薄膜を研究対象として、Arイオンエッチングと熱処理の繰り返しによって清浄表面を作製し、LEED観察およびSTM・STS測定を行なった。明瞭な $p(1 \times 1)$ 構造を示すLEEDパターンが得られ面内の格子定数はFePt $L1_0$ 規則相のa軸格子定数 3.846 \AA とほぼ一致する。W探針およびFe, Cr/W探針を用いてSTS測定を行い、+0.35V付近には明瞭なピークを観察した。これらはFePt(001)清浄表面のスピンの偏極表面準位によるものと考えられが、さらなる検証が必要である。

今後はナノ構造(原子配置)、磁気構造、スピンの偏極表面状態の相関をナノスケール以下の空間分解必能で明らかにすることを目指す。さらに真空バリアを介しての電流注入磁化反転の観測などのスピン依存伝導の実験ができると期待している。

スピンナノチューブの量子相転移に関する研究

研原子力機構 SPring-8 坂井徹

東北大金研 野尻浩之

1. はじめに

反強磁性量子スピン鎖 N 本を鎖間方向にも反強磁性交換相互作用で結合した系を N 本鎖スピンラダーと呼ぶが、これをさらに鎖間方向に周期的につないだ系を N 本鎖スピンチューブと呼ぶ。そのうち最も量子効果とフラストレーションの強い 3 本鎖スピンチューブは、ギャップレスの 3 本鎖スピンラダーと違って、強いフラストレーションに起因したスピンギャップを持つことが知られている。

本研究においては、このスピンチューブの磁場誘起現象に焦点を絞り、計算科学的手法と理論的手法を駆使して、スピンチューブが引き起こす新奇な量子現象を探索するとともに、その実験的検証を目指した。

2. 研究経過

まず平成 21 年 5 月に坂井が金研・野尻研究室を訪問し、ターゲットとなるスピンナノチューブの結晶構造や、それまでに行われた強磁場磁化測定などの実験データから推定された物理的パラメータなどについて、測定したメンバーなどと打ち合わせを行うと同時に、数値的厳密対角化と密度行列繰り込み群による磁場誘起量子相転移の理論解析計画について議論した。また、12 月にも坂井が訪問し、比熱測定や磁化測定の進捗状況について打ち合わせを行い、今後の数値シミュレーションによるデータ解析や、元素置換などにより新しい性質の探索のための打ち合わせを行った。さらに、平成 22 年 2 月にも坂井が訪問し、新しい理論予測を報告するとともに、磁場中比熱測定による実験的相図について、その解釈を議論した。

3. 研究成果

理想的な 3 本鎖スピンチューブに対する、数値的厳密対角化と密度行列繰り込み群を用いた大規模数値シミュレーションにより、三角形の相互作用が十分強い場合には、飽和磁化の 3 分の 1 のところに磁化プラトーが生じること、またチューブ断面が歪んで二等辺三角形になる場合には、その歪み方に依存する 2 つのプラトー形成機構があり得ることが判明した。そして最も重要な発見として、このふたつのメカニズムが入れ替わる途中のパラメータ領域に、カイラル秩序を伴う全く新しい量子相が現れることが理論的に示された。この新しい磁場誘起量子相は、磁化プラトー以外の磁化でも広範囲にわたって出現することも示され、これまでの磁場中比熱測定で検出されているスピン波速度が急激に変るクロスオーバー現象が、この量子相の発見につながると期待される。

4. まとめ

スーパーコンピュータによる大規模数値シミュレーションを用いて、理想的な 3 本鎖スピンナノチューブの理論解析を行い、磁場中でカイラル秩序を伴う新しい量子相転移が起きることを理論的に予測し、詳細な相図を描くことに成功した。すでに合成されているスピンナノチューブ物質は、磁場によって誘起される、スピン波速度の変るクロスオーバー現象が発見されており、これが理論的に予測された新しい量子相であるかどうか、さらに詳細な測定と定量的な理論解析により確認を急いでいる。

S=1 種を含む有機磁性体における量子効果

研究代表者名

大阪府立大学・理学系研究科・細越裕子

研究分担者名

大阪府立大学・理学系研究科・今澤貴史、多田晶美
東北大学・金属材料研究所・野尻浩之

1. はじめに

我々は、軽元素から構成される有機ラジカルが量子スピン系の研究に適した素材であることに注目し、様々なスピン空間構造を持つ磁性体の構築及び磁性研究を行っている。量子磁性体の特徴として整数スピンと半整数スピンが異なる基底状態を示すことが挙げられ、本研究では、S=1 種を形成する有機ビラジカル F2PNNNO および S=1 のスピラダー物質 BIP-TENO の磁氣的性質を検討する。

2. 研究経過

世界最初の S=1 スピラダー物質 BIP-TENO の磁化曲線は 10T のスピンギャップと 42~65T の 1/4 磁化プラトーで特徴付けられる。最近、非磁性不純物置換により、スピンギャップが小さくなることで磁化率測定から示唆されている。本研究では、約 2% の不純物置換された BIP-TENO 混晶について強磁場磁化測定を行った。

一方、F2PNNNO は 2 つの S=1 が $2J/k=470K$ の強い強磁性相互作用で結ばれた S=1 磁性体で、分子間反強磁性相互作用により歪んだ蜂の巣格子を形成する。磁化曲線は 9T のスピンギャップと 15~25T の 1/2 磁化プラトーで特徴付けられる。本研究では、スピンギャップが閉じたギャップレス領域において、電子スピン共鳴実験を行った。

3. 研究成果

パルス磁石と ³He 冷凍機を組み合わせた磁化測定システムを用いて、BIP-TENO の非磁性不純物置換体について 0.5K で磁化測定を 30T まで行った。磁場を加えると磁化を生じ、10T 付近で屈曲したのち磁化は大きく増大した。純粋な BIP-TENO と同程度の大きさのスピンギャップを持ち、低磁場では端のスピン効果による磁気状態が混在しているのかもしれない。

また、F2PNNNO 単結晶を用いて、135, 370GHz において、磁場を ac 面内で加えながら、電子スピン共鳴スペクトルの温度依存性の測定を 2~30K の温度範囲で行った。いずれもピークの分裂が観測された。過去に実験を行った有機磁性体は単一の吸収スペクトルを示したことは対照的である。ギャップ相およびギャップレス相におけるエネルギースペクトルを考察するためには、今後角度依存性の測定を詳細に検討する必要がある。

4. まとめ

S = 1 種を含む有機磁性体について、磁化および電子スピン共鳴スペクトルの測定を行った。S = 1 スピラダー BIP-TENO の不純物置換の基底状態を強磁場磁化測定から考察した。S=1/2 ダイマー分子による不純物置換では、スピンギャップはあまり変化しないことが明らかとなった。今後不純物濃度を高めた場合について、またラダー構造の一方の足のみ非磁性置換した場合について磁気状態を検討していく予定である。S=1 の蜂の巣格子化合物 F2PNNNO の電子スピン共鳴実験を行い、ピークの分裂を観測した。X,Q バンド測定では単一のピークしか観測されなかったが、ギャップ相である 4.8T でピーク分裂が観測されたことは、この物質の磁気状態を解明する上で重要な進展である。今後、角度依存性の測定を行い、詳細を明らかにしてゆきたい。

メスバウアー分光による新規高磁気異方性材料の局所磁気構造の解析

研究代表者名

名古屋工業大学・大学院工学研究科・壬生 攻

研究分担者名

名古屋工業大学・大学院工学研究科・田中雅章
 東北大学・金属材料研究所・水口将輝，高梨弘毅

1. はじめに

次世代の超高密度磁気記録媒体の材料として、大きな磁気異方性を有する硬質磁性薄膜の開発が必要になっている。種々の硬質磁性材料の中でも $L1_0$ 構造を有する FePt 合金は、磁気異方性が特に大きいことに加えて耐食性にも優れ、有用な材料であることが知られている。しかしながら、硬質磁気特性の発現のために結晶構造の規則化が不可欠で一般に 500 °C 以上の温度での熱処理が必要とされること、構成元素の Pt が比較的高価なことなどが実用上の問題点として挙げられている。一方、最近、東北大学・金属材料研究所・高梨グループにより、単原子層制御交互蒸着法を用いて作製された FeNi 合金薄膜が垂直磁気異方性を示すことが見出され、比較的安価な元素からなる高磁気異方性薄膜材料の候補として、可能性が探られつつある。自然界では超徐冷環境の隕鉄中などにしかみられない $L1_0$ 型 FeNi 規則合金の c 軸配向膜が単原子層制御交互蒸着によって安定化されていることが、垂直磁気異方性の発現に結びついていると考えられるが、研究室レベルの X 線回折法では、Fe と Ni の X 線原子散乱因子が近いため、結晶規則度の評価や A1 型 (fcc) 不規則合金相共存度の評価が難しくなっている。そこで本研究では、メスバウアー分光法(原子核によるガンマ線共鳴吸収分光法)を用いて FeNi 合金薄膜試料の局所的な結晶構造および磁性の評価を行ない、さらなる垂直磁気異方性の向上に結びつく局所情報を得ることを目的とした。

2. 研究経過

前年度、Fe 単原子層 (1 ML) および Ni 単原子層 (1 ML) を交互に 50 回積層して Fe の総厚を 10 nm 程度にした FeNi 薄膜試料に対して予備的なメスバウアー分光測定を行ったが、解析可能な S/N 比のスペクトルを得るのに 1 週間程度のデータ積算時間を要した。そこで今年度は、 ^{57}Fe の量を自然 Fe 中の 10 倍の 20% 程度にした Fe 蒸発源を用いて、メスバウアー分光用試料を作製した。また、磁気異方性と直結する結晶配向性や結晶規則度の向上のためには緩衝層と基板温度の選択が鍵となるが、今年度は、高梨グループで新たに垂直磁気異方性の向上が見出された $\text{MgO}(001)/\text{Fe}(1 \text{ nm})/\text{Au}(20 \text{ nm})/\text{Cu}(50 \text{ nm})/\text{Au}_{0.06}\text{Cu}_{0.51}\text{Ni}_{0.43}(50 \text{ nm})$ 緩衝層を用いた試料について、メスバウアー分光測定を行った。

3. 研究成果

いくつかの基板温度で作製された FeNi 薄膜試料に対し、内部転換電子メスバウアー分光法を用い、室温におけるメスバウアー分光スペクトルを測定した。高梨研究室での磁化測定によると、蒸着温度 40~67 °C の試料群では垂直磁気異方性が小さく、蒸着温度 100~187 °C の試料群では垂直磁気異方性が大きいことが示されている。

Fig. 1 に典型的な ^{57}Fe メスバウアー分光スペクトルを示す。磁化測定で $0.3 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ の弱い垂直磁気異方性がみられた蒸着温度 40 °C の試料においては、比較的線幅が広い 6 本の磁気分裂ピーク(積分強度比 3 : 4 : 1 : 1 : 4 : 3)がみられ、不規則合金相が形成され、かつ面内形状磁気異方性が支配的であることが示されている(Fig. 1(a))。一方、磁化測定で $6.3 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ の垂直磁気異方性がみられた蒸着温度

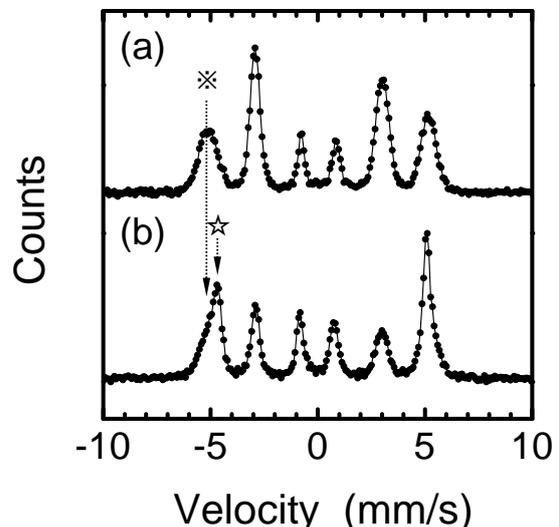


Fig. 1 ^{57}Fe Mössbauer spectra for FeNi films grown at (a) 40 °C and (b) 157 °C.

157 °C の試料においては、垂直磁気異方性の発達を反映して 2 本目、5 本目のピーク強度比の低下がみられるとともに、1 本目のピーク位置(☆)が高エネルギー側(右方向)にシフトし、対称性が低い $L1_0$ 型規則合金相が形成されていることが示されている (Fig. 1(b)). 後者の試料には A1 型不規則合金相に由来するピーク(※)も共存しており、薄膜成長条件の最適化を進め、共存する A1 相を低減させることによって、垂直磁気異方性をさらに向上させることができる可能性を示唆する結果となっている。

4. まとめ

上記のメスバウアースペクトルから得られた情報を、より詳細な解析から得られた情報と併せてまとめると、下記の通りになる。

- (1) 垂直磁気異方性が小さい試料群と大きい試料群に明確なスペクトルの差がみられる。
- (2) どちらの試料群のスペクトルにも磁気的な Fe サイトが何種類か存在する。
垂直磁気異方性が小さい試料群では A1 相が支配的。
垂直磁気異方性が大きい試料群では $L1_0$ 相と A1 相が共存。
- (3) 垂直磁気異方性が大きい試料群ではゼロ磁場における内部磁場 (磁気モーメント) の平均方向は薄膜法線に対して $40 \sim 50^\circ$ 。
- (4) 垂直磁気異方性が大きい試料群の $L1_0$ 相と A1 相は磁気的に交換結合している。
- (5) $L1_0$ 相の電場勾配 (結晶歪み) は隕石中のものよりも大きい可能性がある。
- (6) $L1_0$ 単相の試料を実現することによって、さらなる垂直磁気異方性の向上が期待できる。

研究課題名

磁気冷凍用メタ磁性型化合物の回転電極法による形状制御性の評価

研究代表者名

東北大学・大学院工学研究科・藤田 麻哉

研究分担者名

東北大学・大学院工学研究科・矢子 ひとみ

1. はじめに

$\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ 化合物は、遍歴電子メタ磁性転移と呼ばれる特異相転移に由来する巨大磁気熱量効果を示すため、フロン不要な高効率室温磁気冷凍への応用が注目されている。応用の展開には、冷凍デバイスに組み込むための形状制御も重要であり、熱交換などの理由から、実効効率は形状因子が強く支配する。すなわち、形状加工を施す技術開発は磁気冷凍実用化において極めて重要である。本研究では、実用上有利な球状加工の可能性と、加工後に生じる金属相の特徴と磁性への影響について検討を行う。

2. 研究経過

坩堝フリーな手法であるプラズマ回転電極法(Plasma Rotating Electrode Process: PREP) 装置に注目し、PREP 直後の球サイズの分布や、サイズに応じた球内金属組織と、これを均質化後の磁気特性との関連を調査し、PREP による本材料の工業応用への適正性について検討を行った

3. 研究成果

前年度の成果より、金研・千葉研究室所有の PREP に設置可能な電極用棒状試料の作製方法を確立したので、本年度も同様の手法により電極を作製した。

PREP による試料作製時の電極回転数は 9000rpm とし、雰囲気は Ar ガス中でプラズマ放電を行った。

実効部約 1kg の電極について、溶解後の残存部は約 500g であったが、そのうち約 150g は回転放出せず、フレーク状に落下した。この点については、今後、プラズマの中心位置などを検討して放電する工夫が必要である。回転放出した粒状試料を網目篩にかけてサイズ毎に分球し、重量計測より算出した分布を図 1 に示す。600 μm 以上の球については真球性が悪く、回転楕円体に近い形状であった。一方、500 μm 以下の領域では、球形状は比較的良好であり、今回の回転条件では 200 μm 付近に分布中心を有することがわかった。

図 2 には、異なる球サイズに応じた磁気特性の差の有無を調べるため、1050 $^{\circ}\text{C}$ 5 日間の均質化熱処理後に測定した熱磁気曲線である。試料グループは便宜的に、500 μm 以上、350~500 μm および 350 μm 以下の 3 つに分けた。狙いとした組成は $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ の $x = 0.88$ であったが、熱磁気曲線の変曲点から得たキュリー温度 T_c と組成の関係から算出される Fe 濃度 x は約 0.86 程度である。この差の原因としては、高周波溶解および PREP 中の La の選択的蒸散が挙げられる。すなわち今後、蒸散を勘案した仕込み組成の選定が必要である。また、球サイズが大きいグループほど、 T_c 直上での磁化の減少が緩慢であり、最大サイズのグループでは、 T_c 以下での磁化の約半分程度の値が残存する。これは、均質化熱処理が不十分なため、 α Fe が残留しているためである。一方、350 μm 以下では、 α Fe の残存が減少し、 T_c での磁化変化が、より急峻である。均質化熱処理の進行は、溶解直後の球内の金属組織サイズに依存することがわかっており、この差は、球サイズに応じて凝固中の冷却速度に差があることを示す。今後、回転数および雰囲気圧を変化させた検討が必要である。

4. まとめ

PREP により $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ の球状試料を得た。球サイズ分布は比較的狭い範囲に収まるが、大サイズの異型粒も一定量存在する。また、サイズ毎に冷却速度に差がある。今後、回転速度や雰囲気圧などを制御した際の、これらの特徴の変化を検討する必要がある。

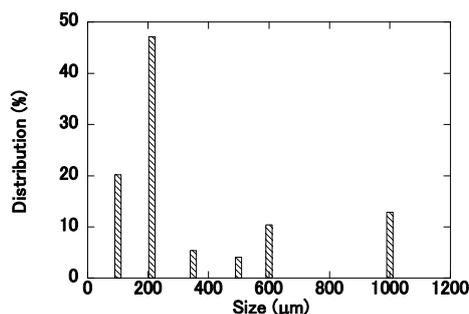


図 1 PREP により得られた粒状試料のサイズ分布

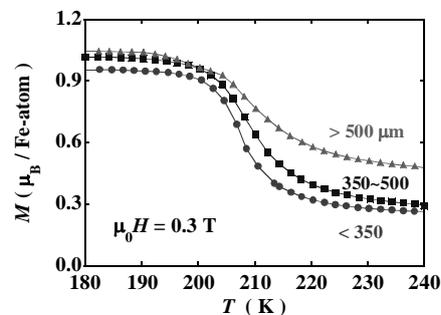


図 2 異なる球サイズ毎の熱処理後の熱磁気曲線

コバルト酸化物の金属・絶縁体転移：コバルトサイトへの元素置換効果

研究代表者名

岩手大学・工学部・内 藤 智 之

研究分担者名

岩手大学・工学部・佐々木 寛 子、藤 代 博 之
東北大学・金属材料研究所・西 寄 照 和、小 林 典 男

1. はじめに

RECoO₃(RE は希土類元素)では 3 価の Co イオンのスピン状態が温度の低下とともに中間もしくは高スピン状態から低スピン状態へ転移することが知られている。Tsubouchi 等 [Phys. Rev. B **66**, 052418 (2002)] により Pr_{0.5}Ca_{0.5}CoO₃においてスピン状態転移と同時に金属・絶縁体転移が起こることが報告された。転移の起源のひとつとして CoO₆八面体が傾くことによる結晶場エネルギーの変化が提案されている。本研究では Co サイトへの元素置換を行い CoO₆八面体の変化と金属・絶縁体転移の相関に対する知見を得ることを目的とする。

2. 研究経過

本研究では(Pr_{0.875}Gd_{0.125})_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃を出発組成とし、Co サイトへ Mn または Ni を置換した。測定には一般的な固相反応法で作製した焼結体試料を用いた。目的組成の混合粉をまず 1000°Cの空气中で 24 時間仮焼きした。その後、仮焼き粉を粉砕・混合しペレット形状に一軸加圧成形したものを 1200°Cの酸素中で 48 時間本焼きした。粉末 X 線回折により全ての測定試料が単相であることを確認した。電気抵抗率は直流四端子法で測定した。

3. 研究成果

Mn 置換試料 (Pr_{0.875}Gd_{0.125})_{0.7}Ca_{0.3}(Co_{1-z}Mn_z)O₃ (z=0-0.05)の電気抵抗率の温度依存性ρ(T)を図 1(a)に示す。z=0 試料では明瞭な 1 次の金属絶縁体転移(MIT)が観測された。Mn 置換量 z の増加とともに MIT は次第にブロードになり、z=0.03 以上で 2 次相転移に変化した。また、転移温度 T_Mは高温側に移動した。つまり Mn 置換は低スピン状態を安定化させる。図 1(b)に Ni 置換試料 (Pr_{0.875}Gd_{0.125})_{0.7}Ca_{0.3}(Co_{1-z}Ni_z)O₃ (z=0-0.05)のρ(T)を示す。MIT は Ni 置換量の増加とともに僅かにブロードになり、転移温度 T_Mは低温側に移動した。MIT は z=0.03 以上で完全に消失した。従って、Ni 置換は中間スピン状態を安定化させる。CoO₆八面体体積 V_oは、高温から低温に向かって MIT を横切るときに膨張することが知られている。従って、Mn は V_oを増やす 3 価として置換されていると考えられる。一方、Ni は 2~4 価を取り得るがいずれも Co イオンよりもイオン半径が小さい。従って、Ni 置換は V_oを減少させて MIT を起こりにくくする考えられる。これは得られた結果を定性的には説明する。今後は、XANES 等で各イオンの価数を調べて定量的な議論をする必要がある。

4. まとめ

今回、Pr-Ca-Co-O 系の金属・絶縁体転移(MIT)と CoO₆八面体の相関を調べるために Co サイトを Mn および Ni で置換した試料を用いて実験を行った。CoO₆八面体体積と MIT 温度の相関は置換元素のイオン半径で定性的に説明されることが分かった。

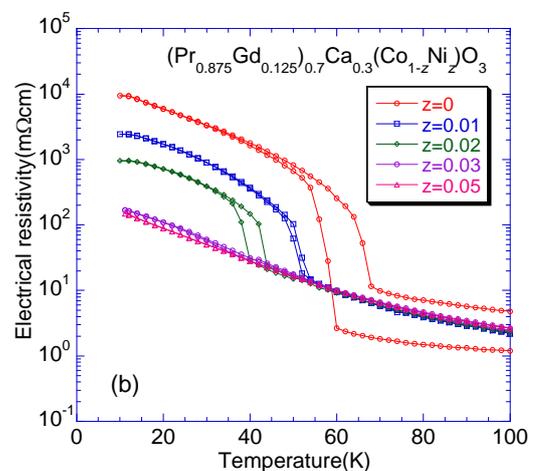
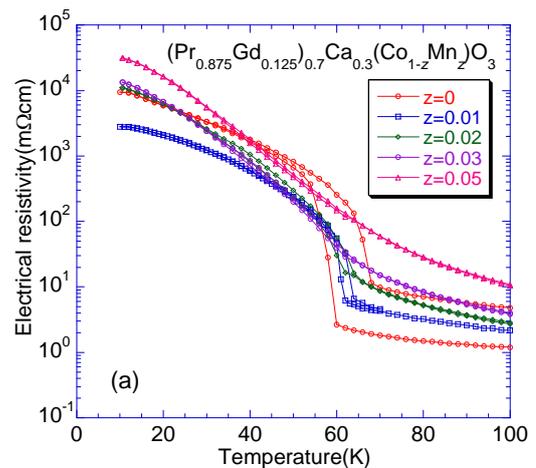


図 1 : (Pr_{0.875}Gd_{0.125})_{0.7}Ca_{0.3}(Co_{1-z}M_z)O₃ の電気抵抗率の温度依存性 ; (a) M=Mn, (b) M=Ni.

強磁場軟 X 線 MCD の要素技術開発

東京大学・物性研究所・松田康弘

東北大学・金属材料研究所・鳴海 康雄、
財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・中村 哲也、
東京大学・物性研究所・何 金龍

1. はじめに

X 線 MCD (円二色性分光) は元素毎かつ軌道毎の磁気モーメントとそれらの間の相関を直接測定できる手法として、物質科学研究に不可欠の手法となっている。しかしながら、通常、実験が可能なのは磁気モーメントが偏極した強磁性体に限られてきた。最近、我々は超強磁場を加えることにより常磁性体や反強磁性体を偏極させ、X 線 MCD の適用範囲を格段に広げること成功した。しかしながら、現状では X 線 MCD が可能なのは硬 X 線領域に限られており、軟 X 線領域は未開拓の分野となっている。MCD 測定においては元素毎に異なる吸収端での円偏光に対する吸収率の差を測定するが、硬 X 線に対応するのは主に希土類の L 吸収端で、応用上重要な 3d 遷移金属イオンの M 吸収端は軟 X 線領域にあるため、その実現には様々な困難が伴う。その理由の 1 つは、軟 X 線実験には超高真空が 必用であり、他の 1 つの理由として、吸収が強く単純な透過測定が容易でないためである。そのため、まず実験室系で要素技術を開発する必要がある。本研究の目的は、強磁場と軟 X 線 MCD の研究者が緊密に連携して、超強磁場軟 X 線 MCD 測定のための手法を確立することである。これが可能になれば、あらゆる磁性イオン、常磁性体を含むあらゆる磁性体の XMCD による評価が可能になると期待される。具体的には、超高真空に対応できる磁石開発、検出系の開発と強磁場環境の影響の評価を行い、実験に必用な要素技術を確立する。

2. 研究経過

超強磁場発生に必要となるマグネット開発を設計段階から行った。軟 X 線で必須となる超高真空、ヘリウムを用いた試料冷却を同時に実現するため、真空チャンバーとクライオスタットも考案した。これらはプロトタイプから改良を重ね、現在、実際に SPring-8 の軟 X 線ビームライン BL25SU にて予備的な実験が可能段階まで達している。これらは世界初の技術のため、既に硬 X 線の MCD で実績のある松田を中心に、東北大金研の回路定数可変のパルス強磁場発生装置を用いて、実際の条件に近い形での試作および試験を繰り返して、問題点を洗い出すことで、最終的に放射光施設で用いることが可能な段階にこぎ着けた。

3. 研究成果

マグネットを、真空チャンバー、クライオスタットに組み合わせた磁場試験において 30 T を達成した。BL25SU にて試験実験を開始し、実際にデータを取りながら計測技術開発を行った。軟 X 線では透過法が使えないため、全電子収量法により吸収強度を測定する。 10^{-12} A 程度の微弱な信号の検出を必要とするため、パルス磁場との組み合わせには当初ある程度の困難が予想され、本研究の克服すべき最重要技術的課題の 1 つであった。このために、東北大金研の強磁場発生装置を用いて、様々な形状と特性のプローブを系統的に試験して、理想的なプローブの開発に目処をつけた。さらに、磁場発生による誘導電磁ノイズを軽減するためにパルス幅を 10 ms 程度と長くし、20 T 程度の磁場領域において標準的な強磁性 Co 薄膜の XMCD 観測を試みた。その結果、電磁ノイズを十分小さく抑えることができ、パルス強磁場中での全電子収量法による XMCD 観測に世界で初めて成功した。現在は、低温環境を必要とするマルチフェロイクスなどの物質について、より難易度の高い実験を遂行中である。

4. まとめ

20 T 以上の強磁場において、世界で初めて軟 X 線領域での XMCD 測定に成功した。現在、ヘリウム温度程度の極低温、50 T 級の超強磁場における実験の実現に向けて研究を遂行中である。本研究により、これまで不可能であった 3d 遷移金属、4f 希土類金属の磁気状態の直接観測が多くの物質群で可能になるため、今後の極めて大きな研究発展が期待される。

Co₂MnSiハーフメタル電極とMgO障壁層を用いた強磁性トンネル接合の作製と評価

東北大学大学院・工学研究科・安藤康夫

東北大学・工学研究科・大兼幹彦、常木澄人、平塚喬士、

東北大学・金属材料研究所・桜庭裕弥、高梨弘毅

1. はじめに

スピントロニクスにおいて取り扱われる強磁性材料において最も重要パラメーターの1つとしてスピン分極率が挙げられる。スピン分極率が大きい材料を用いることにより、巨大な磁気抵抗効果やスピントルクによる磁化制御など電子スピン依存の伝導現象が顕在化するため、磁気ランダムアクセスメモリ、超高感度磁気ヘッドなど次世代スピントロニクスデバイスを実現する上で、高スピン分極強磁性材料を開発することは極めて重要なテーマである。本共同研究の目的は、高梨研究室が有する高度な磁性薄膜技術、特にFePtに代表されるL₁₀型の垂直磁化膜の作製技術を利用することにより、垂直磁気異方性を付加したCo₂MnSi(CMS)エピタキシャル膜を作製し、さらにこれを電極とした強磁性トンネル接合(MTJ)により、CMSのハーフメタル性を反映した巨大なトンネル磁気抵抗比(TMR比)を室温において実現することである。

2. 研究成果

まず、垂直磁化を用いないCMSベースのMTJについてTMR比の改善を試みた。昨年度の研究成果よりCMS/MgO界面においてCo原子の交換エネルギーが低下がTMR比の温度依存性が大きい起源であることが推測されたため、CMS/MgO界面に極薄のCoFe系強磁性材料を挿入することにより、交換エネルギーの増大を試みた。その結果、CoFeを0.5 nmだけCMS/MgO/CMSの上下界面に挿入したMTJにおいて、室温で245%、低温で1275%のTMR比を観測することに成功した。またTMR比の温度依存性を示すTMR(RT)/TMR(LT)に関しても、CoFeの挿入をすることにより0.29から0.40まで向上することが分かった。一方、FePtやCoPt上に成膜したCMSについて、CMSの磁化の垂直磁気異方性を放射光によるXMCDによって評価し、その結果、CMS膜厚が4nm以下で、CMSが垂直方向に磁化容易軸をとることが分かった。また、これらを利用しMgOトンネル障壁との組み合わせによって上下が垂直磁化膜のMTJを作製し、予備的な成果ではあるが室温で10%前後のTMR比を得ることに成功した。

3. まとめ

CMSをベースとした面内磁化のMTJと垂直磁化のMTJにおけるトンネル磁気抵抗効果を観測した。面内磁化のMTJにおいてはCMSとMgOの界面に極薄のCoFeを挿入することによってTMR比を室温低温ともに増大させることに成功した。また、垂直磁化MTJではL₁₀型垂直磁化膜上にCMSを堆積させることによってCMSの磁化容易軸を垂直方向へ向け、これによって10%前後のTMR比を得ることができた。

研究課題名 熱電及び熱スピン変換現象の系統的研究

研究代表者名
慶應義塾大学・理工学部・的 場 正 憲

研究分担者名
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・内 田 健 一
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・岡 本 尚 也
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・梶 原 瑛 祐
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・菊 池 大 介
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・中 山 裕 康
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・太 田 岳
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・北 村 有 司

1. はじめに

近年、エネルギー技術への応用の観点から、熱との交差相関物性である熱電変換及び熱スピン変換材料に注目が集まっている。申請者らは、近年スピントロニクス分野において最近発見された、熱勾配からスピン流・スピン圧（非平衡スピン流の駆動力）が生成される現象—スピンゼーベック効果—に着目し、これとスピン流-電圧変換効果である逆スピンホール効果を用いて熱勾配からスピン流を経由して起電力を取り出す技術の開発を行っている。本共同研究では、特に物質依存性について定量的研究を行うことでスピンゼーベック効果に基づく熱電及び熱スピン変換技術の基礎を形成することを目的としている。

2. 研究経過

温度差を付けた強磁性金属には、温度勾配に沿った方向に正味のスピン流とスピン圧が誘起される。これがスピンゼーベック効果である（図1）。この現象は磁性体に温度勾配を付けるという非常に単純な手段によるスピン流生成を可能にするため、スピン流を利用した次世代情報デバイスにおける駆動源の1つとして期待されているが、微視的発現機構など未解明な部分も多い。

本共同研究では、Pt 薄膜中の逆スピンホール効果をスピン検出器として用いることで、以下の3つの実験を行った。

- (1) 強磁性金属におけるスピンゼーベック効果の物質依存性測定
- (2) 強磁性金属におけるスピンゼーベック効果の温度依存性測定
- (3) 磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果の観測

系統的な実験研究を行うことによりこの現象の微視的メカニズムの解明、及びこれを利用した発電・初スピン技術の開発を行うことは、物理的・応用的観点から非常に重要である。

3. 研究成果

(1) 強磁性金属におけるスピンゼーベック効果の物質・温度依存性

本研究では、これまで強磁性 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 薄膜で観測されていたスピンゼーベック効果を、強磁性 Ni , Fe 薄膜においても測定した。検出器には Pt 薄膜中の逆スピンホール効果を用いた。測定結果を図2に示したが、スピンゼーベック効果による信号はこれらの物質の中で $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ が最も大きく、その符号は Ni のみが逆符号であった。このような物質依存性は、従来のゼーベック効果の振る舞いと全く異なるものであり、これはゼーベック効果とスピンゼーベック効果の物理的起源が異なるということを示唆する結果である。

また、これまでに行われてきた実験はすべて室温下において行われてきたものであるが、 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$ 系を用いてスピンゼーベック効果の温度依存性測定も行った。その結果、250 K 付近においてスピンゼーベック効果由来の信号が符号反転し、低温領域において信号強度が増大することを明らかにした。これも従

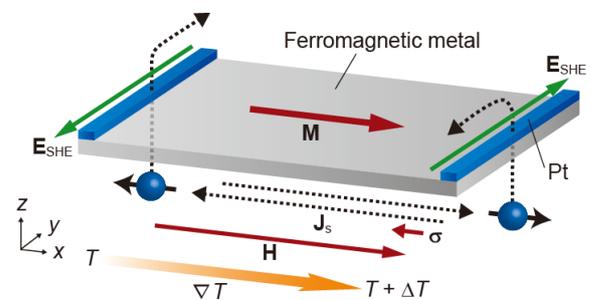


図1. 逆スピンホール効果を用いたスピンゼーベック効果の検出原理.

来の熱電現象には見られない新奇な振る舞いであり、現象論の枠組みを超えてスピントロニクス効果の微視的起源を探索する上での重要な情報を与える。

(2) 絶縁体スピントロニクス効果の発見

スピントロニクス効果が強磁性金属のみならず磁性絶縁体においても発現することを発見した。従来のスピントロニクス効果に関する理論解析は伝導電子スピンに由来するスピン流・スピン圧をベースに行われてきたが、伝導電子が存在しない絶縁体においてスピントロニクス効果が観測されたことで、それとは全く異なるスピン流・スピン圧のキャリアの存在が明らかになった。

本研究では、ガーネット型フェリ磁性絶縁体 $\text{La}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x=0, 1$) と Pt 薄膜中の逆スピントロニクス効果を用いた測定により、この現象の起源が局在スピンの集団励起モード(スピン波)であることを見出し、一様な温度勾配によって誘起されたスピン圧が高温側、低温側ではそれぞれ逆符号となること(図3)、及び数ミリメートルにも及ぶ特性長に支配されていることを実験的に明らかにした。この特性長は従来のスピン流物理を支配していたスピン拡散長(数ナノ~数マイクロメートル)とは明らかに異なるものである。本研究では、様々な温度領域においてスピントロニクス効果の空間分布測定を行うことで、この新しい長さスケールの定量を行った。

本研究で初めて観測された絶縁体スピントロニクス効果は、スピントロニクスデバイスにおけるスピン流源としての利用が期待される。絶縁体をスピン流源として用いることで、従来の金属系デバイスとは設計思想が全く異なるスピン素子を構築可能である。また、スピントロニクス効果の有するマクロスケールにスピン流を生成できるという稀有な特徴を生かせば、これまで全く研究されてこなかった絶縁体中のスピン流に関する物理を実験的に調査するための有用な手段の1つとなるだろう。

一方、本実験によって立証されたように、絶縁体スピントロニクス効果と貴金属における逆スピントロニクス効果を組み合わせることで、伝導電子が存在しない絶縁体からも熱的に電力を生成可能である(図3)。この効果を用いれば、スピン流によって動作する絶縁体ベースの熱電変換素子を構築可能であり、伝導電子による熱輸送を介したエネルギー損失を本質的に回避できる。絶縁体層に熱伝導率の低い物質を用いれば、(ウィーデマン・フランツ則による制約を受けずに)熱電性能指数を大幅に向上させることも可能になるだろう。

4. まとめ

本共同研究では、Pt 中の逆スピントロニクス効果を用いることで金属及び絶縁体におけるスピントロニクス効果の検出を行った。スピントロニクス効果を用いれば、これまで導体でのみ行われていた熱電研究を絶縁体にも拡張することができ、今後の更なる研究によって発電効率を上げることで様々な応用が期待できる。

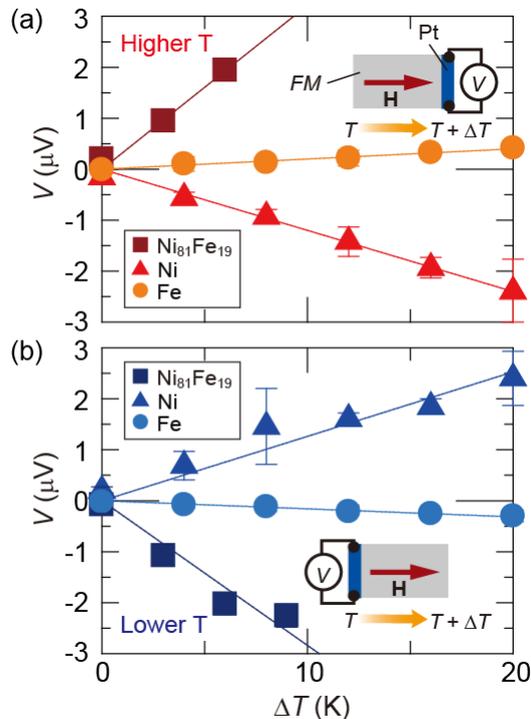


図2. $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$, Ni, Fe 薄膜におけるスピントロニクス効果の観測。

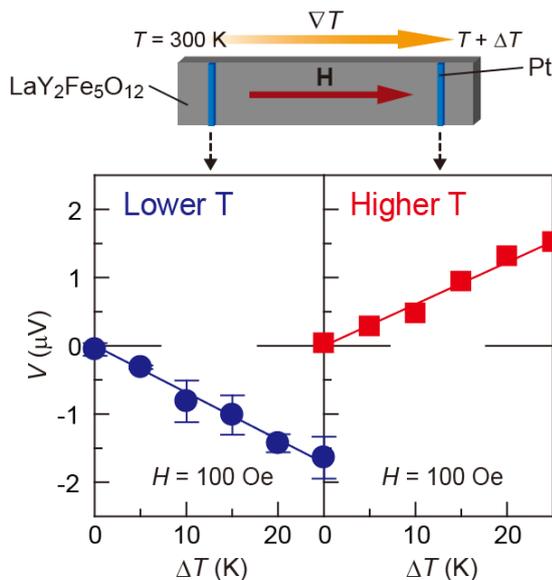


図3. 磁性絶縁体 $\text{LaY}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ におけるスピントロニクス効果の観測。

研究課題名
スピン注入を利用した金属スピングラスの基礎的研究

研究代表者名
慶應義塾大学・理工学部・佐藤 徹 哉

研究分担者名
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・安藤 和 也
慶應義塾大学・理工学部・針 井 一 哉
慶應義塾大学大学院・基礎理工学専攻・吉野 達 郎
慶應義塾大学大学院・総合デザイン工学専攻・井 口 亮

1. はじめに

磁性原子がランダムに配列したランダム磁性体であるスピングラスでは、低温でスピンの凍結し、エイジング現象やメモリー効果などの特徴的な記憶現象を示す。これらの現象は、ニューラルネットワークや多値記憶と深い関わりがあり、従来のスピンのアップとダウンを利用した二値記憶デバイスに代わり、より大容量で柔軟な記憶デバイスへの応用が期待される。角運動量の流れであるスピン流はスピンの方向とそれらの流れる方向の二つの量によって表されるベクトル量であり、スカラー量である電流よりも多くの情報量を持つ。また、スピン流はスピンの直接作用することができるため、スピングラスの記憶現象を制御するために利用される。このようにスピングラスの記憶現象を解明・制御する上で、スピン流のスピングラス中での物性について知見を得ることは重要である。

2. 研究経過

本研究ではスピングラスにスピン流が注入された場合に生じる信号を測定することで、スピングラス中でのスピン流の挙動を理解することを目指した。試料は強磁性/中間層/スピングラス層の三層構造を用い、強磁性層の強磁性共鳴を利用したスピンポンピングによる非局所スピン流注入を試みた。強磁性層が磁気共鳴することによって中間層を経てスピングラス層にスピン流が注入される。スピン流注入が生じた結果として強磁性層の磁化の緩和が大きくなり、強磁性共鳴スペクトルの半値幅が大きくなることが知られている。このスペクトルの半値幅の温度依存性を測定することでスピン流の挙動を調べた。熱酸化した Si 基板上にスピングラス層として AgMn をスパッタにより成膜した後、蒸着装置内で表面をエッチングし、中間層 Cu および強磁性層 NiFe を連続的に蒸着することで界面を清浄に保ちながら試料を作製した。中間層はスピングラス層と強磁性層の間に交換結合を生じさせないために挿入した。また、比較のためにスピングラス層を含まない試料も同時に作製した。マイクロ波を薄膜に対して垂直方向に、掃引磁場を薄膜に対して平行方向に印加し、低温での強磁性共鳴のスペクトルの半値幅の温度依存性を調べた。測定した半値幅の温度依存性を図 1 に示す。スピングラス層を有する試料の半値幅はすべての温度領域でスピングラス層を有しない試料の半値幅より大きかった。また、掃引磁場の角度を変えながら半値幅を評価したところ、すべての角度でスピングラス層を有する試料の半値幅が大きかった。試料ごとの偏差は温度変化に比べて十分小さく、この偏差の主な要因は試料と磁場の微小な角度差にあった。このことから、半値幅の増大はスピングラス層において注入されたスピン流が吸収されることによるものであると考えられる。スピングラス層を含む試料と含まない試料の半値幅の差を図 2 に示した。半値幅の差は 22 K で極小を取り、この温度はスピングラス層 AgMn の膜厚を考慮した転移温度と一致した。

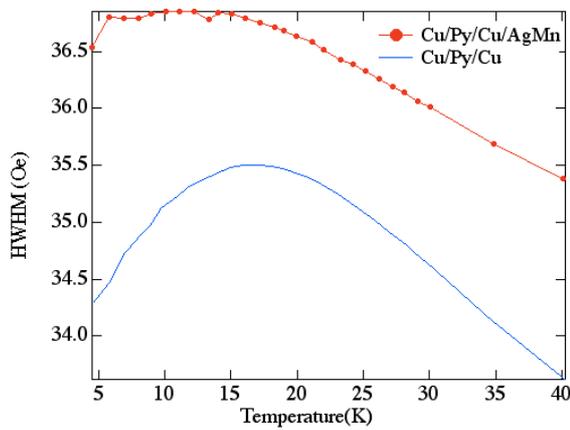


図 1: スピングラス層を含む試料と含まない試料の半値幅の温度依存性

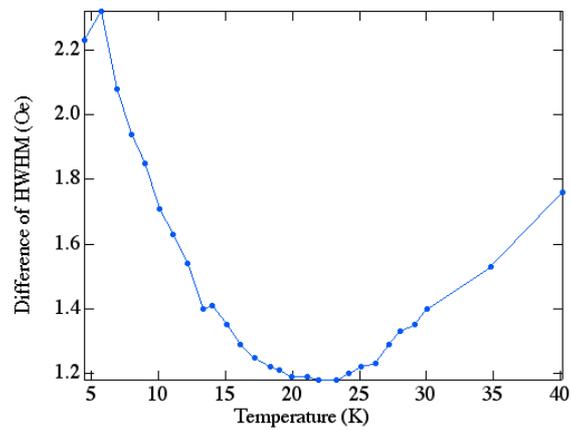


図 2. 半値幅の差の温度依存

3. 研究成果

スピングラス層が常磁性相からスピングラス相へと転移することでスピントルクの傾向が変化することがわかった。スピントルクの吸収はスピングラス層の膜厚に対するスピントルク長の比とミキシングコンダクタンスによって支配されるため、これらの値が温度に応じて変化していると考えられる。スピングラス層の膜厚を過去に報告されたスピントルク長よりも厚く設定したが、実際にはスピントルク長と比較して本研究で用いたスピングラス層の厚さが不十分であった可能性があり、スピントルク長の変化を無視することができない。観測された変化は、スピントルク長が変化する場合、常磁性相ではスピントルク長が温度の低下とともに長くなるが、スピングラス転移に伴ってスピントルク長が急激に低下するものと説明される。一方、ミキシングコンダクタンスが変化する場合、常磁性相ではミキシングコンダクタンスが温度の低下とともに減少し、スピングラス相で増大するものと理解される。いずれの場合にもスピングラス相の磁気秩序に関連した変化が現れているものと考えられ、スピングラス相と常磁性相ではスピントルクの挙動が異なることがわかった。

4. まとめ

スピントルクを用いた局所スピントルク注入を行い、スピングラス層でのスピントルクの吸収を調べた。スピングラス層の磁気状態の変化に応じてスピントルクの吸収が変化することがわかった。今後、この変化の要因がミキシングコンダクタンスとスピントルク長の変化のどちらにあるのかを明らかにすることで、スピントルクを用いてスピングラスの磁気情報を詳細に調べることができるものと考えられる。