

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 4月18日現在

機関番号：13903

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540335

研究課題名（和文）界面フラストレーション効果を利用した磁気相転移の制御

研究課題名（英文）

Control of Magnetic Phase Transition Using Interfacial Magnetic Frustration Effect

研究代表者

壬生 攻（MIBU KO）

名古屋工業大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：40222327

研究成果の概要（和文）：

本研究は、強磁性／反強磁性積層膜の界面における「磁氣的フラストレーション効果」を用いて、物質の（とりわけ反強磁性体の）磁氣的性質を積極的に制御することが可能かどうか、実験的に探ることを主目的とした。研究期間内には磁氣的フラストレーション効果を通じて磁気転移温度などが自在に制御できていることを明確に示すデータが観測されるには至らず、現段階の技術では積極的制御が容易ではないことが示された。一方、研究を推進していく上で試料面での要素技術であった良質の強磁性薄膜および反強磁性薄膜の作製には進歩がみられ、原子層制御交互蒸着法を用いた自然界に存在しない新しい強磁性合金の作製に発展した。また、測定面での要素技術であった放射光核共鳴散乱は、本研究が駆動力となって薄膜試料測定用手段として格段の進歩を遂げ、今後の磁性薄膜研究への有効利用に繋がる成果が得られた。

研究成果の概要（英文）：

In this research project, we have experimentally examined whether it is possible to control the magnetic properties of (antiferromagnetic) materials, such as magnetic structures and magnetic transition temperatures, using magnetic frustration effect at ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces. Clear evidence that the magnetic properties can be controlled by the frustration effect was not obtained experimentally, so that it was found difficult to control the magnetic properties by this effect at the present stage. On the other hand, the project has boosted up the technique to prepare high-quality ferromagnetic and antiferromagnetic thin films. Some new ferromagnetic alloys which do not exist in natural equilibrium states were successfully prepared using atomically controlled alternate deposition. The nuclear resonant scattering with synchrotron radiation, which has been a key measurement technique to perform this project, also has been improved remarkably as a tool to study magnetism of thin films.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	1,200,000	360,000	1,560,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：磁性，薄膜，界面，磁氣的フラストレーション，反強磁性体，磁氣相転移，メスバウアー分光，放射光核共鳴散乱

1. 研究開始当初の背景

強磁性体と反強磁性体の積層薄膜は、ハードディスクの磁気情報読み取り用ヘッドなどに実用材料として用いられてきたが、積層界面の磁性や積層薄膜の磁氣的挙動に関しては、未解決の問題も数多く残っていた。反強磁性体のうち、原子がもつ磁気モーメントの方向が一つの原子層内で平行に揃い、隣り合う原子層間で反平行になった、いわゆる層状反強磁性構造をもつ物質が界面で強磁性体と接する場合、界面に原子ステップが存在しない理想的な系では、磁気モーメントを平行または反平行にする「交換エネルギー」がすべての原子ペア間で最小になるような安定磁気配置が可能であるのに対し、界面に原子ステップが存在する現実の系では、原子ペア間の交換相互作用が競合し、磁氣的なフラストレーションが生じる（図1）。このような磁氣的フラストレーション効果の低減のために、強磁性層あるいは反強磁性層の多磁区化や界面での 90° 磁化配置の形成などが起きると言われていたが、フラストレーションが大きい場合には、磁気秩序の不安定化が起る可能性も考えられた。しかしながら、厚さ数ナノメートル程度の反強磁性層の磁氣的性質を実験的に探るのは容易ではなく、現実の反強磁性層の磁気秩序が界面フラストレーション効果からどういった影響を受けるかについては十分明らかになっていなかった。

研究代表者のグループでは、本研究の開始以前に、巨大磁気抵抗効果を示す Fe/Cr 多層膜の Cr 層内にプローブ（探針）となる ^{119}Sn 原子核をドーピングした試料を作製し、 ^{119}Sn 原子核位置に誘起された有効磁場をメスバウアー分光法（ガンマ線共鳴吸収分光法）を用いて探ることによって、反強磁性 Cr 層の局所

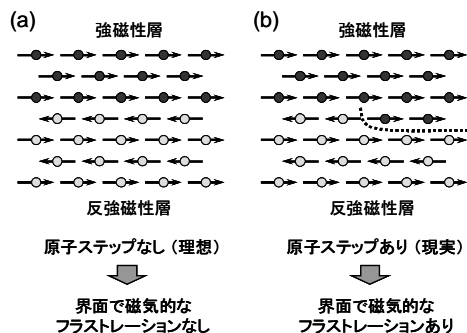


図1 強磁性層／反強磁性層界面における磁氣的フラストレーション効果の概念図。

磁性を調べる実験を行っていた。その結果、Cr 層の磁気モーメントの大きさが、強磁性 Fe／反強磁性 Cr 界面での磁氣的フラストレーション効果の影響を受けて、著しく減少していることを示唆する結果を得ることに成功していた。この成果を発展的に継承させるべく、以下のような研究を計画するに至った。

2. 研究の目的

本研究は、強磁性／反強磁性界面における「磁氣的フラストレーション効果」を用いて、磁気構造や磁気転移温度など、物質の磁氣的性質を積極的に制御することが可能かどうか、実験的に探ることを主目的とした。とりわけ、強磁性／反強磁性積層膜の界面に導入された磁氣的フラストレーション効果により、Cr など反強磁性体の磁気相転移を積極的に制御することができるかどうかについて、反強磁性層中にプローブとなるメスバウアー原子核の単原子層を挿入し、局所的な磁性測定手段であるメスバウアー分光法および放射光核共鳴散乱法（いわゆる放射光メスバウアー分光法）を用いて探ることを目指した。また、そのための要素技術として、良質磁性薄膜試料の作製と、薄膜の磁性研究に資する放射光核共鳴散乱法の最適化を推進した。

3. 研究の方法

まず、強磁性／反強磁性積層膜の反強磁性層中にメスバウアー原子核からなる単原子層を挿入した構造を持つ単結晶状良質薄膜試料の作製を目指した。接合された反強磁性層の磁性を室温付近で制御するために、室温付近に磁気転移温度をもつ強磁性薄膜の候補として Co_2TiSn を始めとするホイスラー合金を選び、原子層制御交互蒸着法を用いて作製条件の最適化を進めた。通常の磁化測定では困難な反強磁性層の磁性の評価には、単原子層状に挿入した ^{119}Sn 核または ^{57}Fe 核をプローブとしたメスバウアー分光法および核共鳴散乱法を用いた。密封線源を用いたメスバウアー分光実験は名古屋工業大学にて、放射光核共鳴散乱実験は SPri ng-8 の共用ビームラインにて行った。得られたスペクトルからプローブとなる原子核が感じる内部磁場の大きさと方向を見積り、プローブ核を取り巻く反強磁性層の磁性を評価した。物性評価手段として発展途上であった放射光核共鳴散乱法に対しては、薄膜試料の磁性測定用に最適化を進めた。

4. 研究成果

まず、下地強磁性層の候補物質として、バルクで室温付近の強磁性転移温度 (370 K) をもつ $L2_1$ 型結晶構造のホイスラー合金 Co_2TiSn に着目し、原子層制御交互蒸着法を用いて (001) 配向薄膜の作製を試みた。その結果、基板温度を適切に制御することによって、良好な (001) 配向薄膜が得られることが判った。また、基板温度の増減とともに $L2_1$ 型結晶規則度が変化し、磁気転移温度が増減することが明らかになった。これにより、Cr との結晶整合性が良く、かつ磁気転移温度が室温付近に調整された単結晶状強磁性薄膜を作製するノウハウが確立された。

一方、 Co_2TiSn 薄膜や Co_2MnSn 薄膜を用いて、放射光を利用した新しい磁性測定手段である放射光核共鳴散乱法を薄膜試料に適用するための実験条件最適化を進めた。その結果、これまで世界の主流であった、パルス X 線を入射したのち試料中の原子核により共鳴散乱される X 線を「時間スペクトル」として測定し、X 線の干渉による“うなり”パターンから局所磁性を調べる方法とは異なる、通常の密封放射線源を用いたメスバウアー分光法と同様の「エネルギースペクトル」を測定して局所磁性を調べる方法を薄膜試料に適用することに成功し、薄膜の不均一な磁気環境の研究にきわめて有望な方法の構築に成功した。

引き続き、強磁性/反強磁性積層膜の反強磁性層中にメスバウアー原子核からなる単原子層をドーピングした単結晶状薄膜試料を作製し、反強磁性層の磁気秩序を調べた。研究期間内には磁氣的フラストレーション効果を通じて磁気転移温度などが自在に制御できていることを明確に示すデータが観測されるには至らず、少なくとも Co_2TiSn などのホイスラー合金を用いて反強磁性 Cr の磁氣的性質を自在に操ることは現段階の技術では容易でないことが明らかになった。

一方、本研究を推進する上での要素技術には発展がみられた。まず、試料作製面での要素技術として、良質の合金薄膜作製に対する原子層制御交互蒸着法と基板温度制御の有効性が示された。基板温度制御による規則度の変化を通じて Co_2TiSn の磁気転移温度が制御できることが判ったが、この試料作製技術は、自然界に存在しない非平衡ホイスラー合金 Co_2FeSn などの薄膜作製に結びついた。また、測定面での要素技術であった放射光核共鳴散乱法は、薄膜の磁性測定に資するように発展し、中でもこれまでの時間スペクトル測定法に代り、エネルギースペクトル測定法が開発されたことの意義は、今後の磁性薄膜研究

推進に対し、大きなものとなっている。この成果については、今年 9 月に大連で開催される国際会議にて招待講演を行う予定である。なお、この新しい測定手法は、最近界面における大きな反平行磁気結合の発現が見出された強磁性 Fe/強磁性 Fe_3O_4 積層膜の界面研究にも利用され、反平行結合の機構解明につながるユニークな界面状態の観測に結びついている。今後、さまざまな薄膜の磁性研究に有効利用されていくものと大いに期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

- ① T. Mitsui, R. Masuda, M. Seto, E. Suharyadi, and K. Mibu
Grazing-Incidence Synchrotron-Radiation ^{57}Fe -Mössbauer Spectroscopy Using Nuclear Bragg Monochromator and Its Application to the Study of Magnetic Thin Films
Journal of Synchrotron Radiation (査読有) **19** (2012) 198 - 204.
- ② 堀隆博, 石川佳樹, 和田悠希, 田中雅章, 壬生攻
原子層制御蒸着法により作製したホイスラー合金薄膜における局所磁性の温度依存性評価
信学技報 (査読無) **109** (2010) MR2009-64-33 - MR2009-64-37.
- ③ K. Mibu, D. Gondo, T. Hori, Y. Ishikawa, and M. A. Tanaka
Local Magnetism of Co_2MnSn Heusler Alloy Films Prepared by Atomically Controlled Alternate Deposition
Journal of Physics: Conference Series (査読有) **217** (2010) 012094-1 - 012094-4.
- ④ E. Suharyadi, T. Hori, K. Mibu, M. Seto, S. Kitao, T. Mitsui, and Y. Yoda
Nuclear Resonant Time Spectra for ^{119}Sn in Co_2TiSn Heusler Alloy Films
Journal of Magnetism and Magnetic Materials (査読有) **322** (2010) 158 - 162.

[学会発表] (計 9 件)

- ① 壬生攻, 柳原英人, 三井隆也, 増田亮, 堀紫織, 村田敦, 田中雅章, 鈴木和也, 喜多英治, 瀬戸誠
放射光メスバウアー分光法による Fe/Fe₃O₄ 界面の局所構造・局所磁性探査
日本物理学会第 67 回年次大会
2012 年 3 月 27 日, 西宮
- ② 壬生攻
メスバウアー分光法を用いた磁性薄膜の
キャラクタリゼーション - 放射線源実
験と放射光実験 -
PF 研究会「磁性薄膜・多層膜を究める：
キャラクタリゼーションから新奇材料の
創製へ」
2011 年 10 月 14 日, つくば
- ③ S. Hori, M. A. Tanaka, Y. Ishikawa, Y.
Wada, A. Murata, and K. Mibu
Local Magnetism of Non-Equilibrium
Co₂FeSn Heusler Alloy Films Prepared by
Atomically Controlled Alternate
Deposition
International Conference on the
Applications of the Mössbauer Effect
2011 (ICAME 2011)
2011 年 9 月 26 日, 神戸
- ④ 壬生攻
新たな展開を迎えたメスバウアー・核共
鳴散乱分光法 - 最先端物性研究のプロ
ープとして - 磁性薄膜研究のプロープ
として: XMCD・中性子散乱との相補的役
割 (シンポジウム講演)
日本物理学会 2010 年秋季大会
2010 年 9 月 24 日, 堺
- ⑤ K. Mibu
Investigations on Thin Fe Films and
Heusler Alloy Films Using
Synchrotron-Radiation-Based Mössbauer
Spectroscopy (招待講演)
3rd Joint International Conference on
Hyperfine Interactions and
International Symposium on Nuclear
Quadrupole Interactions (HFI/NQI 2010)
2010 年 9 月 14 日, ジュネーブ
- ⑥ 田中雅章, 石川佳樹, 和田悠希, 壬生攻,
北尾真司, 依田芳卓, 瀬戸誠
原子層制御蒸着法で作製した Co₂MnSn 薄

膜の核共鳴散乱法による局所磁性評価
日本物理学会第 65 回年次大会
2010 年 3 月 20 日, 岡山

- ⑦ 堀隆博, 田中雅章, 壬生攻
原子層制御蒸着法により作製した Co₂TiSn
ホイスラー合金薄膜の局所磁性評価
日本物理学会 2009 年秋季大会
2009 年 9 月 25 日, 熊本
- ⑧ 壬生攻, 田中雅章, 石川佳樹, スハルヤ
ディ・エディ, 黒葛真行, 瀬戸誠, 依田
芳卓
メスバウアー分光法および核共鳴散乱法
を用いた Co₂MnSn ホイスラー合金薄膜の
磁氣的界面効果およびサイズ効果の評価
第 33 回日本磁気学会学術講演会
2009 年 9 月 14 日, 長崎
- ⑨ K. Mibu, D. Gondo, T. Hori, Y. Ishikawa,
and M. A. Tanaka
Local Magnetism of Co₂MnSn Heusler
Alloy Films Prepared by Atomically
Controlled Alternate Deposition
International Conference on the
Applications of the Mössbauer Effect
2009 (ICAME 2009)
2009 年 7 月 21 日, ウィーン

[その他]

ホームページ等

http://kinou.elcom.nitech.ac.jp/mibu_lab/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

壬生攻 (MIBU KO)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 40222327

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

田中雅章 (TANAKA MASAOKI)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 50508405