

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01803

研究課題名(和文) 層間磁気結合による単分子磁石の磁気モーメントの制御

研究課題名(英文) Controlling magnetic moments of single molecular magnets via interlayer magnetic interaction

研究代表者

岡 博文(Oka, Hirofumi)

東北大学・材料科学高等研究所・助教

研究者番号：70374600

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、強磁性/非磁性/強磁性の金属多層膜で用いられる「層間磁気結合」を応用することで、単分子磁石に働く磁気結合の強さの制御法を確立することである。三角形をもつ2原子層高さのCoアイランドがヘリンボーン構造の“エルボー”に周期的に形成されること、Auの蒸着量を調整することにより、Coと単分子磁石の間に挿入するAuの膜厚を調整できることを明らかにした。しかし、エルボーに形成されたCoアイランドは基本的に面積が小さく、TbPc2 / Au / Coの多層構造を得るためにはかなり多くのTbPc2を蒸着する必要がある、単分子の状態が多層構造を形成するのは難しいことが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

「単分子磁石」と基板との間に働く磁気結合の強さを制御することは、単分子磁石の磁気モーメントの方向の固定・制御を可能にするため、分子に働く磁氣的相互作用の解明という学術的な興味だけでなく単分子磁石を利用した分子スピントロニクスデバイスの創出に向けて重要な課題である。本研究によって、単分子磁石上で観測されていた近藤共鳴ピークが、強磁性基板に非磁性金属を介して近接することにより消失することがわかった。今後は、近藤共鳴ピークの消失と分子に働く磁氣的相互作用の関連について検討を進めていく。

研究成果の概要(英文)：The Goal of this project is to establish the way to controlling the magnetic interaction between single magnetic molecules and magnetic substrates via interlayer exchange coupling, which has been often utilized in ferromagnetic/non-magnetic/ferromagnetic metal multilayers. Our idea is to turn the magnetic interaction by inserting Au interlayers between magnetic molecules TbPc2 and ferromagnetic Co islands and investigate the resulting change in the magnetic interaction with spin-polarized STM. We found that bilayer Co islands were regularly formed at “elbow” sites of Au(111) herringbone structure and the Co islands were covered with Au deposited afterwards. The thickness of the Au layer covering the Co islands changed with the amount of deposited Au. However, the size of the Co islands at the elbows was not large enough to realize a single-TbPc2/Au/Co structure since TbPc2 on Au is too mobile at room temperature to stay at Au/Co.

研究分野：表面電子物性

キーワード：層間磁気結合 単分子磁石 スピン偏極STM

1. 研究開始当初の背景

近年、磁性を有する分子がもつスピンの自由度を積極的に利用し、スピンメモリやスピンフィルターに応用しようという「分子スピントロニクス」についての研究が盛んに行われている。その中でも、「単分子磁石」は1つの分子で1つの磁石として振る舞うため、磁石の方向をそれぞれ「0」と「1」に対応させることにより、分子サイズのスピンメモリ・究極の高密度磁気記録を実現できる可能性があり、大きな注目を集めている。

しかし、単分子磁石をスピデバイスへ応用する上での大きな問題の1つは、基板との相互作用により磁気モーメントの向きがすぐに反転してしまい固定化できないことである。磁気モーメントの向きが反転してしまうと、磁気モーメントの方向に対応させた情報の保持ができなくなり、メモリとしての機能を失ってしまう。そこで、強磁性など磁気秩序をもつ基板に単分子磁石を吸着し、単分子磁石の磁気モーメントと基板の磁化との間に働く交換相互作用を利用して、単分子磁石の磁気モーメントを固定する方法が提案された。これまでに、強磁性や反強磁性を示す金属や酸化物基板に単分子磁石 TbPc_2 (Tb: テルビウム、Pc: フタロシアニン) を吸着した研究が行われ、基板の磁化方向に応じて TbPc_2 の磁気モーメントの方向を固定できることがわかった。

しかしながら、強磁性基板の場合、 TbPc_2 の磁気モーメントは基板の磁化と強固に結合してしまい、 TbPc_2 の磁気モーメントを独立に反転することができず、 TbPc_2 の磁気モーメントを反転するには基板の磁化を反転させる必要があった。単分子スピンメモリや単分子スピデバイスを実現するためには、単分子磁石の磁気モーメントと基板の磁化との磁気的結合を弱め、単分子磁石の磁気モーメントを基板の磁化とは独立に反転・制御することが求められる。

最近、Au(111)基板にCoアイランドを形成し、さらに単分子磁石の TbPc_2 を吸着した時に、走査トンネル顕微鏡 (STM) 観察から、Au基板とCoアイランドにまたがるように吸着する TbPc_2 を発見した。スピン偏極STMを用いて TbPc_2 の磁気モーメントの方向を詳細に調べたところ、磁気モーメントは面直方向に安定化し、外部磁場の掃引に対して吸着するCoアイランドの磁化とは独立に反転することがわかった。また、 TbPc_2 の磁気モーメントの反転には大きな磁場を印加する必要があることもわかった。この結果は、 TbPc_2 と強磁性体 (Coアイランド) との間に働く磁気結合の強さを非磁性層 (Au) の挿入により制御できる可能性を示している。また、磁気結合の強さを十分小さくすることができれば、大きな磁場ではなくもっと小さな外部刺激で TbPc_2 の磁気モーメントを個別に反転できる可能性も示している。

2. 研究の目的

そこで、本研究では、単分子磁石に働く磁気結合の強さを制御する方法として、金属多層膜で用いられている「層間磁気結合」に着目した。層間磁気結合は、強磁性/非磁性/強磁性の金属多層膜において、2つの強磁性層の間に働く磁気結合の強さがその間にある非磁性層の膜厚により減衰振動する現象である。

本研究では、以下の2つを目的とした。

- [1] 単分子磁石/非磁性/強磁性構造を作製し、非磁性層の膜厚変化により、単分子磁石の磁気モーメントと強磁性体の磁化との磁気結合の強さを制御する。
- [2] STM探針からの刺激 (スピン偏極電流など) により、狙った単分子磁石個々の磁気モーメントを反転し、磁気モーメントの方向を制御する。

3. 研究の方法

(1) Ar^+ イオンスパッタリングとアニーリングによりAu(111)基板表面を清浄化し、電子線蒸着によりCoをAu(111)基板に蒸着した。Coは自己形成的に三角形のナノ構造を形成した。続けてAuを蒸着し、Coナノ構造を覆った。ナノ構造の大きさとAuの膜厚は、蒸着レートを一定にし蒸着時間を変えることにより調整した。作製したナノ構造の形状を調べるために、STM観察を行った。

(2) 上記(1)で作製したAu/Co/Au(111)基板に単分子磁石 TbPc_2 を室温で蒸着しその吸着構造をSTM観察により明らかにした。

(3) 微分コンダクタンススペクトル測定を行い、Au(111)上の TbPc_2 で観察されていた近藤共鳴ピークが、Au/Co/Au(111)基板上ではどのように変化するかを調べた。

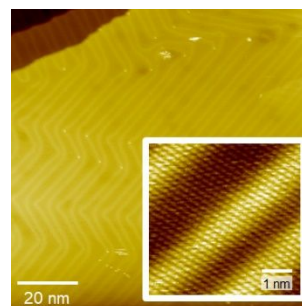


図1: Au(111)清浄表面のSTM像。

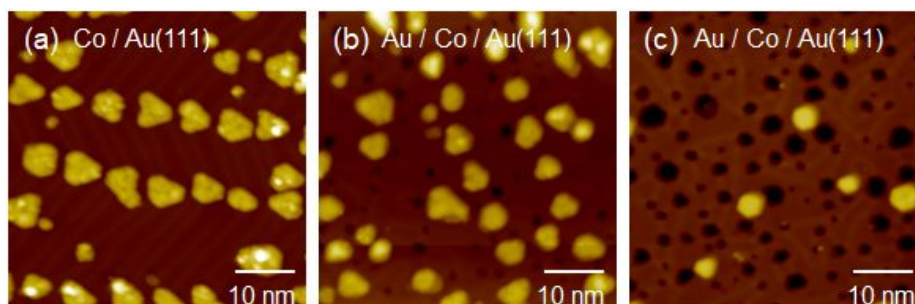


図 2: (a) Co を蒸着した Au(111) 表面の STM 像。 (b) その後 Au を蒸着した表面の STM 像。 (c) 少量の Co を蒸着し Au を蒸着した表面の STM 像。

4. 研究成果

(1) Au(111) 基板の清浄化、Co の蒸着、Au の蒸着、それぞれの項目毎に STM 観察を行った。その結果、Au(111) に特徴的なヘリンボーン構造と原子像の観察に成功し、Au(111) 清浄面が得られていることを確認した (図 1)。その後、Co を蒸着し、三角形をもつ 2 原子層高さの Co アイランドがヘリンボーン構造の“エルボー”に周期的に形成されることを確認した [図 2(a)]。続けて Au を蒸着し、Au の蒸着量によりどのように Co / Au(111) の表面が Au に覆われていくのかわかると明らかにした [図 2(b)]。この結果から、Au の蒸着量を調整することにより、Co と単分子磁石の間に挿入する Au の膜厚を調整できることがわかった。また、Co の蒸着量を減らし同様の実験を行ったところ、先の結果と同様に Co と単分子磁石の間に挿入する Au の膜厚を調整できることがわかった。しかしながら、Co は“エルボー”に形成されることからその大きさを変えることが難しいこともわかった。

(2) TbPc₂ の蒸着レートを Au(111) 基板に蒸着して確認した。図 3 に示すように、孤立した TbPc₂ 分子が Au(111) 表面上に分散していることを確認した。また、一部の分子は蒸着中にクラックし、Pc リングが 1 つ外れた TbPc または Pc になっていることも確認した (図 3)。Au(111) 基板上と同様に、TbPc₂ は Au / Co / Au(111) 基板上を拡散し、Au(111) や Co アイランドのステップエッジに多く吸着することがわかった。また、Au のテラス部分に吸着する TbPc₂ も少数であるが確認することができた。しかし、上述したようにエルボーに形成された Co アイランドは基本的に面積が小さく、単分子の状態では TbPc₂ / Au / Co の多層構造を形成するのは難しいことがわかった。また、Au / Co がほとんど TbPc₂ に覆われてしまうため、Co の磁気特性にアプローチするのは困難であることも明らかになった。

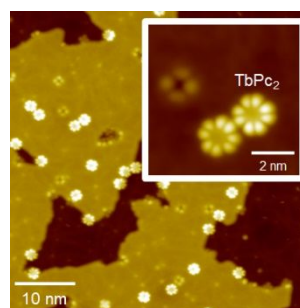


図 3: TbPc₂ を蒸着した Au(111) の STM 像。

(3) Co の磁気特性にアプローチするのは困難であることから、TbPc₂ の電子状態測定に重点を置いた。Au / Co 上の TbPc₂ で微分コンダクタンススペクトル測定を行ったところ、Au(111) 上の TbPc₂ で観察されていた近藤共鳴ピークが観察されないことがわかった。Co との磁気相互作用によるものと思われるが、物理的起源については考察中である。今後、TbPc₂ と Co を隔てる Au 薄膜の層数を変化させ、近藤共鳴ピーク出現の Au 層数依存性を明らかにする予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Taguchi Taiki, Sugawara Katsuaki, Oka Hirofumi, Kawakami Tappei, Saruta Yasuaki, Kato Takemi, Nakayama Kosuke, Souma Seigo, Takahashi Takashi, Fukumura Tomoteru, Sato Takafumi	4. 巻 107
2. 論文標題 Charge order with unusual star-of-David lattice in monolayer NbTe	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.107.L041105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Oka Hirofumi, Katoh Keiichi, Okada Yoshinori, Oka Daichi, Hitosugi Taro, Yamashita Masahiro, Fukumura Tomoteru	4. 巻 50
2. 論文標題 Single Molecular Adsorption of Terbium(III) Bis-phthalocyaninato (TbPc_2) Governed by Two Surface Reconstructions of Perovskite Type SrVO_3 Epitaxial Ultrathin Film	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1489 ~ 1492
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1246/cl.210270	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	米田 忠弘 (Komeda Tadahiro) (30312234)	東北大学・多元物質科学研究所・教授 (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------