

平成 21 年 6 月 12 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19560669

研究課題名 (和文) 金属/非金属グラニューラ磁性膜の磁化動力学

研究課題名 (英文) Magnetization dynamics in metal/non-metal magnetic granular films

研究代表者

吉原 章 (YOSHIHARA AKIRA)

石巻専修大学・理工学部・教授

研究者番号：40166989

研究成果の概要：

本研究では金属/非金属グラニューラ強磁性膜 TM-A1-0 (TM=Fe, Co) 中に熱励起されたスピン波を光散乱により観測した。振動数の磁場変化から交換磁場 H_E を決定し、室温における電気抵抗率 ρ と逆二乗則 $\rho \propto H_E^{-2}$ が成立していることを見出した。また、これらの試料の電気抵抗率 ρ を 300 K～4.2 K まで測定し、 ρ が 140 K 以下の広い温度範囲では T^2 項が、さらに低温では $-\log T$ 項が支配的になることを見出した。TM-A1-0 強磁性膜の電気抵抗における $-\log T$ 項の存在は以前に報告されていたが、100 K を超す広い温度範囲での T^2 項の確認は世界初である。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：光散乱・固体物性

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：ブリルアン散乱・グラニューラ磁性膜・スピン波・交換相互作用・電気抵抗

1. 研究開始当初の背景

近年、情報・電子機器の小型化・高性能化は著しい。それに伴い、使用周波数も GHz といった高周波領域にシフトしている。携帯電話等、身近にあふれている電子情報機器からの高周波漏洩磁場による健康面への悪影響

の懸念も取りざたされている。

GHz を超える高周波領域で動作する磁気デバイスを実現するためには、高電気抵抗・高飽和磁化、そして大きな磁気異方性が要求される。磁気異方性定数の大きさを制御することができれば、強磁性共鳴吸収により特定周

波数の漏洩磁場のみを選択的に吸収させることも可能となる。

本研究の対象である金属／非金属グラニューラー磁性膜 TM-Al-O (TM=Fe, Co)は、高周波スピントロニクス応用分野で要求される前記の材料特性条件をほぼ満たした材料である。金属／非金属グラニューラー磁性膜とは非金属絶縁体である Al-O マトリクス中に直径数 nm の強磁性金属微粒子が分散した材料である。膜組成・酸化条件等を変えることにより金属強磁性的な性質から非金属超常磁性的な性質まで大きく制御することができる。例えば、Fe-Al-O は GHz 領域における磁気記録ヘッドへの応用が、Co-Al-O は巨大磁気抵抗素子としての応用が注目されている。しかしながら、これまで磁性材料の観点から組成と材料特性の関連性については詳しく調べられてきたものの、磁性物理学の観点に立った基礎研究が十分に行われてきたとは言い難い状況にある。

研究分担者（平成 20 年度は連携研究者）である財団法人・電気磁気材料研究所主任研究員大沼繁弘博士は金属／非金属グラニューラー磁性膜材料作成と特性評価の第一人者である。一方、研究代表者は我が国におけるブリルアン散乱による金属単層膜・多層膜・人工格子のスピノ波分光・表面弾性波分光研究を強力に推進し、これまで 40 編を超える研究論文を発表してきた。研究代表者とこれまでも共同研究を行ってきた（財）電気磁気材料研究所藤森啓安研究統括者（東北大学名誉教授）の仲介により平成 16 年に大沼博士を紹介され、材料研究分野と磁気物理学分野の研究者が密接に相互協力することで、金属／非金属グラニューラー磁性膜の磁気物性解明と高性能材料の作成実現を目指すこととなった。平成 16 年に共同研究を開始し、平成 17, 18 年度の科研費基盤研究(C)「Fe-Co-Al-O グラニューラー膜のレーザー分光研究」(17560586)の交付を受けた。

この研究において、次の 2 つの重要な成果が得られた。

(1) 強磁性状態では磁性微粒子間に交換相互作用が存在し、室温で膜の電気抵抗率 ρ と交換磁場 H_E の間に逆 2 乗則が成立しているように見える。従って、室温の電気抵抗測定により交換磁場を評価できる可能性がある。

(2) 超常磁性膜からの非弾性磁気光散乱の観測に成功し、ゼロ磁場における緩和型スペク

トルが高磁場側では磁場誘起強磁性スピノ波スペクトルに移行することを見出した。

2. 研究の目的

平成 19 年度の科研費基盤研究(C)申請にあたっては、上記の平成 17, 18 年度の研究成果をさらに発展させる形で、次の 2 つの研究課題を設定した。

(1) 超常磁性 Co-Al-O 膜における磁化の高速動力学的解明

超常磁性状態における磁化の動力学的に関する分光学的研究はほとんど行われていない。我々の Co-Al-O 膜に関する研究では、ゼロ磁場における緩和スペクトルの半値幅は 7.8 GHz であり、緩和時間に換算して約 40 ps に相当する。一方、アルミナ中に分散させた Fe 微粒子系について中性子非弾性散乱小角散乱実験が行われ、緩和時間 73 ps が得られている。勿論両者は物質が異なっており、直接の比較は意味を持たないが、速い磁化緩和成分が存在することを明確に示している。超常磁性状態でも磁化の運動には速い応答運動成分があり、この運動が磁気的な高速応答を支配している。高速磁化運動の解明は高周波磁気応答性を改善するうえで重要と考えられる。

(2) スピノ波分光による誘導磁気異方性の起因解明

強磁性金属／非金属グラニューラー膜に特有な興味深い現象が、Pd を添加した Co-Fe-Si-O 系や Co-Fe-Al-O 系で見出された磁場中アニール(1 kOe, 200 °C × 1 時間)による巨大誘導磁気異方性の面内・等方・垂直制御がある。磁場に換算して 300~500 Oe にも達するこの磁気異方性の制御は可逆的であり、きわめて再現性が良いことを特徴とするが、その微視的起因はまだ十分に解明されていない。この起因を解明する一つの方策は、同一膜について成膜時と磁場中アニールにより面内・等方・面直に誘導磁気異方性を制御した状態でスピノ波測定を行い、異方性磁場と交換磁場をそれぞれの状態について決定することである。面内磁気異方性と面直磁気異方性ではスピノ波振動数へ寄与する異方性磁場の符号が異なる。ブリルアン散乱に振動試料型磁化測定装置やトルク測定による実験結果と

組み合わせることにより、磁場中アニールにより強磁性微粒子に生じた磁気異方性の変化を～300 nmの空間的スケールで捉えることが出来る。

研究課題(1)を平成19年度、課題(2)を平成20年度の主要研究目的として申請した。

3. 研究の方法

(1)超常磁性 Co-Al-O 膜における磁化の高速動力学的解明

緩和過程を解明するためには、0.1 GHz～300 GHz にわたる広い振動数領域で緩和スペクトルを測定する必要がある。上記の振動数領域を 3～4 分割し、それぞれの領域で得られたスペクトルをつなぎ合わせて広帯域スペクトルを決定する。金属磁性体の場合、磁気散乱と弾性波散乱は散乱光の偏光面が互いに 90° 異なることを利用すれば、偏光子を光路に挿入することで磁気散乱光のみを容易に分離できる。

①既に緩和の存在を確認している $\text{Co}_{51}\text{Al}_{18}\text{O}_{31}$ 膜を中心に、3～4 枚の超常磁性組成膜について室温と液体窒素温度で広帯域スペクトルを決定し、緩和構造・緩和時間を比較する。必要に応じて中間温度での測定を行う。なお、低温測定用クライオスタットは現有している。

②Fe-Al-O 超常磁性グラニュー膜についても同様に室温と液体窒素温度で広帯域スペクトルを決定し、緩和構造・緩和時間の比較を行う。測定試料の組成については分担者と協議して決定する。

(2)スピン波分光による誘導磁気異方性の起因解明

スピン波測定より巨大誘導磁気異方性制御機構の解明を試みる。このために、巨大誘導磁気異方性を示す $(\text{Co}_{0.95}\text{Fe}_{0.05})_{50}\text{Pd}_{18}\text{Al}_8\text{O}_{25}$ 組成膜、 $\text{Co}_{60}\text{Pd}_{11}\text{Si}_6\text{O}_{23}$ 組成膜について成膜時および磁気異方性を誘導・消去した時点でスピン波測定を行う。スピン波振動数は異方性磁場の大きさとその符合に敏感であることから、スピン波振動数は誘導磁気異方性の変化がスピン波振動数を顕著に変化させることが期待できる。Pd 添加により磁気異方性定数が無添加材料に較べて数倍以上大きくなることが知られており、磁気異方性定数の大き

さを決める上で果たしている Pd の役割についても解明する。

4. 研究成果

平成19年度：

平成17, 18年度に実施した基盤研究(C)において室温で磁化の緩和成分を観測した超常磁性 $\text{Co}_{51}\text{Al}_{18}\text{O}_{31}$ 膜について、液体窒素温度までゼロ磁場中冷却を行い、1 GHz～100 GHzの振動数範囲でブリルアンスペクトルの測定を試みた。この試料のブロッキング温度は100 K程度と評価される。室温で観測された緩和成分について詳細な測定を試みたが、窒素温度では散乱強度の著しい低下、および緩和時間の増大による準弾性スペクトル幅の狭小化のため観測が困難であった。ブリルアン散乱測定において、ゼロ磁場中冷却では速い磁化緩和を観測することは困難であり、むしろ磁場中冷却での測定が必要であることがわかった。最大4 kOeまでの磁場中冷却過程による磁化動力学的相違をブリルアン散乱測定により明らかにするため、現有クライオスタットを改修する必要性が生じた。クライオスタットの改修に手間取ったものの、平成20年末には改修が終了した。現在は使用可能であり、低温磁場中測定の準備を進めている。

前述の超常磁性膜からのブリルアン散乱実験と並行して平成18年度から19年度に行ったTM-Al-O (TM=Fe, Co) 強磁性膜のスピン波ブリルアン散乱実験を行い、交換磁場 H_E と室温電気抵抗値 ρ の間に逆二乗則 $\rho \propto H_E^{-2}$ が成立することを確認した。この成果を論文として完成させる上で、抵抗の温度変化測定を加えるが不可欠と考え、東北大金研低温物質科学センターと共同で4.2 K までの電気抵抗測定を行った。ブリルアン散乱と電気抵抗の結果をまとめた論文を日本物理学会欧文誌に投稿し、2008年9月号に掲載された。この研究の意義は、直接測定が困難な微粒子間交換磁場の大きさを、逆二乗則を適用して測定が容易な電気抵抗測定から評価する手法を確立したことであり、金属/非金属グラニュー強磁性薄膜材料の特性向上と新材料開発に大きく貢献することを期待している。

平成20年度：

ブリルアン散乱測定に使用したFe-Al-O及びCo-Al-O試料の電気抵抗の温度変化を詳

しく調べると、20 K以下の低温では $\log T$ 項が現れ、140 K付近までの温度範囲では T^2 依存性が強く現れ、フォノン散乱による T^5 項は全く観測されることが分かった。ブリルアン散乱で強磁性スピン波が観測されたこと、及び理論的にはスピン波散乱抵抗は低温で T^2 則に従うと期待されることから、この T^2 則はスピン波散乱に起因すると考えられる。これらは微粒子金属の種類によらず観測されていることから、 $\log T$ 項の出現を含めてグラニューラー構造に特徴的な温度変化であると結論できる。更に、 $\log T$ 領域である4.2 K以下の温度で8 Tまでの磁場依存性を測定した結果、0.1 %以下の大きさではあるが飽和しない負の磁気抵抗を確認した。これらの温度依存性・磁場依存性の結果をまとめて日本物理学会欧文誌に投稿し、2009年7月号に掲載される予定である。50 K, 100 Kの T^2 領域においても同様の磁場依存性を確認した。これらの結果は、強磁性金属/非金属グラニューラー膜における近藤効果の可能性を含めて、磁気輸送現象における新しい分野を開くものと期待される。2009年8月にカールスルーエで開催される国際磁気学会ICM2009において30 mK, 27 Tまでの極低温・超強磁場中での測定結果を含めて発表する。

電気抵抗測定において、予想外の新しい興味深い磁気輸送現象が次々と見つかったため、一時的ではあるが実験の重点をブリルアン散乱測定から電気抵抗測定へシフトさせる結果となった。このため、平成20年度の研究課題に設定した当初のスピン波測定によるCo-Al-Oグラニューラー磁性膜における誘導磁気異方性発現機構の解明とその制御可能性追求に関しては、現在スピン波測定を進めているものの、残念ながら未だまとまった成果として発表できる段階ではない。

磁場中冷却による超常磁性膜の磁化動力学の研究も含めて、今後も初期の目的達成を目指して研究を継続する。

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 3件)

①S. Nakamura, T. Nojima, A. Yoshihara, S.

Ohnuma and H. Fujimori: Electrical Resistivity in Ferromagnetic TM-Al-O (TM=Fe, Co) Granular Films: Scattering by Spin Waves and Kondo Like Behaviors. J. Phys. Soc. Jpn. **78**(7) (2009) 掲載予定 (査読有).

②A. Yoshihara, S. Ohnuma, H. Fujimori, S. Nakamura and T. Nojima: Spin Waves and Transport Properties in Ferromagnetic Co-Al-O and Fe-Al-O Granular Films: A Brillouin Scattering Study. J. Phys. Soc. Jpn. **77**(9) 097404(1-7) (2008) (査読有).

③A. Yoshihara, S. Ohnuma and H. Fujimori: Brillouin light scattering from TM-Al-O granular films (TM = Co, Fe) J. Magn. Magn. Mater. **310** 2513-2515 (2007) (査読有).

[学会発表] (計 2件)

①(中村慎太郎)・野島 勉・吉原 章・大沼繁弘・藤森啓安, 強磁性グラニューラー薄膜TM-Al-O (TM=Fe, Co)の電気伝導, 日本物理学会 2009年3月27日 (立教大学・東京)

②(吉原 章)・大沼繁弘・藤森啓安, 金属/非金属ナノグラニューラー膜の交換磁場と電気抵抗, 日本物理学会 2007年9月22日 (北海道大学・札幌)

[その他]

ホームページ

<http://www.isenshu-u.ac.jp/mtc/yoshi-lab/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉原 章 (YOSHIHARA AKIRA)
石巻専修大学・理工学部・教授
研究者番号: 40166989

(2) 研究分担者

2007年度のみ
大沼 繁弘 (OHNUMA SHIGEHIRO)
財団法人電気磁気材料研究所・主任研究員
研究者番号: 50142633

(3) 連携研究者

2008年度のみ
大沼 繁弘 (OHNUMA SHIGEHIRO)
財団法人電気磁気材料研究所・主任研究員
研究者番号: 50142633