

令和 6 年 5 月 28 日現在

機関番号：14403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04881

研究課題名(和文) スピン偏極STMで探る層状反強磁性体のスピンプラストラーション

研究課題名(英文) Spin frustration on layered antiferromagnetism revealed by spin-polarized STM

研究代表者

川越 毅 (Kawagoe, Takeshi)

大阪教育大学・教育学部・教授

研究者番号：20346224

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：層状反強磁性Cr(001)薄膜表面で観測されるらせん転位によるスピンプラストラーション(SF)を実空間で解明することを目標として、表面ナノ構造と磁性をスピン偏極STMを用いて調べた。原子レベルで平坦なテラスとスピン偏極表面準位を有する高品位なCr(001)超薄膜の作成に成功し、1nmの超薄膜でも、室温で層状反強磁性を示す明瞭な磁気像を得た。磁気像の詳細な解析の結果、3個のらせん転位を結ぶ領域でのSFや隣接する2組のらせん転位による量子化軸が90度回転した反強磁性磁区形成を観測した。これらの実験結果は、これまで観測されたことのないSFであり、マイクロマグシミュレーションによる検証にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

反強磁性体を用いたスピントロニクスは、従来の強磁性体を用いたデバイスに比べ、漏れ磁場がない・応答時間が速い・磁場ノイズに強いなどの利点から近年注目されている。しかし、反強磁性体の磁気構造の検出は難しく、磁区形成に不明な点が多く、スピンプラストラーション(SF)も起きる。本研究で用いるスピン偏極STMは、反強磁性体の表面構造と磁気構造・SFの詳細を高精度で解明できる非常に適した方法である。本研究では層状反強磁性薄膜の欠陥によるSFと磁区形成メカニズムの詳細についての研究を行うが、これらの研究から反強磁性体を用いた近未来のスピントロニクス材料開発の指針となる有益な情報が得られると期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify spin frustration (SF) originating from screw dislocations, we investigate surface nanostructure and magnetism of layered antiferromagnetic (AF) Cr(001) films by spin-polarized scanning tunneling microscope (SP-STM). High quality epitaxial Cr(001) films thinner than 3 nm, consisting of atomically flat terraces with distinct spin-polarized surface states, were successfully fabricated. In addition, distinct magnetic images featuring a layered AF order were clearly observed at RT even if the thickness was only 1.0 nm. By scrutinizing the topological and magnetic images obtained SP-STM, we found spin-frustrated triangular areas comprising a cluster of three screw dislocations and large SF area and an AF domain formation with a 90° quantum axis rotation induced by adjacent paired (4) screw dislocations. These novel types of screw dislocation-induced SF could not be observed in the previous studies and they were successfully reproduced by the micromagnetic simulation.

研究分野：表面磁性、表面・界面物性、スピントロニクス、磁性物理

キーワード：層状反強磁性薄膜 スピン偏極走査型トンネル顕微鏡 スピンプラストラーション らせん転位

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

強磁性体の磁区構造の形成の主原因が静磁エネルギーの減少であることは、よく理解されている。しかし、反強磁性体にも磁区構造は存在し、静磁エネルギーがほぼ無視できるので、磁壁で交換エネルギーが増加する。そのため磁区・磁壁の形成過程には依然として不明な点が多い。反強磁性体の磁区形成には欠陥等が関与していると考えられている。また反強磁性体の場合、強磁性体には存在しないスピンプラストレーション(SF)が起きる。代表例は層状反強磁性体表面での欠陥や2次元三角格子(反強磁性相互作用)の場合である。

反強磁性体のSF現象や磁区・磁壁の形成過程の実空間観察やそのメカニズムの解明は、基礎的な磁性物理の理解とスピントロニクスへの応用の観点からもきわめて重要な課題である。反強磁性体などのSF、磁区・磁壁の評価は、実空間観察が必要であるが、強磁性体で用いられる比較的簡便な光学的手法では観察することができない。原子レベルの空間分解能を有し、表面構造と磁性の詳細を高精度で解明できるスピン偏極STM/STSの手法¹⁾は、本研究には、非常に適した方法であり、層状反強磁性体Cr(001)表面も適した研究対象である。

2. 研究の目的

層状反強磁性を示す物質の典型であるCr(001)薄膜表面を観察対象として、表面欠陥・モホロジーとナノ磁気構造の相関をスピン偏極走査型トンネル顕微鏡(STM)を用いて、実空間で分解能の極限ナノ領域まで観察する。研究代表者が長年蓄積してきた高品位な磁性超薄膜作成技術と高性能なスピン偏極STM観察が本研究の鍵である。異なるCr膜厚(t_{Cr})や成長条件の違いを用い、欠陥や表面モホロジーが異なるCr超薄膜を作製し、反強磁性体特有のスピンプラストレーションや磁区・磁壁の発現機構を徹底解明し、スピントロニクスへの応用の具体的展望を発信する。具体的には研究代表者が長年開発・蓄積してきたスピン偏極STM/STS顕微観察法と分子線エピタキシー法による薄膜成長技術を駆使して、 $t_{Cr}<3\text{nm}$ のCr(001)超薄膜を対象として、以下の研究を行う。

(1)高品位なCr(001)超薄膜の作成と欠陥と表面モホロジーの制御~MBE法を用いて、Cr膜厚や成長条件の違いを利用して、表面欠陥密度や表面モホロジーの異なるCr(001)超薄膜の作成。
(2)スピン偏極STMを用いたCr(001)薄膜の表面ナノ構造(表面欠陥など)・磁気構造の実空間観察~反強磁性体特有のスピンプラストレーションや磁区・磁壁の発現機構の解明とマイクロマグネティック・シミュレーションによる磁区構造の検証。

3. 研究の方法

(1)高品質なCr(001)超薄膜の作製と表面ナノ構造・スピン偏極表面準位の検証

実験には、現有の試料成長室・STM観察室を備えた超高真空STM/MBE装置を用いた。到達真空度は試料成長室・STM観察室で $2 \times 10^{-9}\text{Pa}$ 以下である。試料成長室には、Kセル(Au)、電子ビーム蒸着源(Cr, Fe)加熱ステージ、低速電子線回折/オージェ電子分光装置(LEED/AES)が設置されている。STM観察室にはオミクロン社マイクロSTM・探針加熱機構などが設置されている。試料清浄表面作製と評価、探針清浄化、強磁性探針作成、STM観察が室温・超高真空下で可能である。

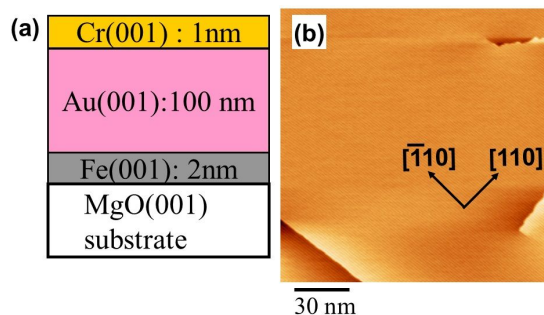


図1(a)に試料(Cr薄膜)の層構成を示す。図1(a)Cr薄膜の層構成と(b)Au(001)表面のSTM像
下地となるAu(001)表面(薄膜)は、MgO(001)基盤を用い、Feパッファ層を蒸着後、基板温度520KでAuシード層をエピタキシャル成長させ作成した。図1(b)にAu(001)薄膜表面のSTM像を示す。原子レベルで平坦な広いテラス(100nm)と単原子ステップが $\langle 110 \rangle$ 方向に配列することが明瞭に観察されている。平坦なテラスを高分解能観察すると、清浄表面特有の (5×28) 構造²⁾も確認できる。このAu(001)表面上にCr(001)超薄膜($t_{Cr}=1\text{-}3\text{nm}$)を作製した。Cr超薄膜の作成条件は、これまでの実験結果で得られている膜厚に依存した適切な方法(2段階成長法や室温蒸着後・熱処理など)を用い、LEED/AESとSTMを用いて表面ナノ構造の評価を行った。STM・LEED/AES観察は室温・超高真空下で行った。

(2)スピン偏極STMを用いたCr(001)薄膜の表面ナノ磁気構造の実空間観察

スピン偏極STM観察に用いたCr(001)薄膜は、(1)の実験で超高真空STM/MBE装置を用いて最適化された、膜厚の異なる(1-3nm)高品質なCr(001)超薄膜を対象として、超高真空下($<2 \times 10^{-9}\text{Pa}$)・室温でFe/W探針を用いて行った。Cr薄膜について、強磁性探針を用いスピン偏極表面準位を利用したトンネル分光法によって磁気像を得る。微分コンダクタンス(dI/dV)はバイアス電圧(V_s)に微小交流電圧を重ねたときのトンネル電流を高感度ロックイン検出することによって測定する。Fe/W探針では試料面内の磁化が検出可能である。強磁性探針の場合、

試料 探針間のトンネル磁気抵抗効果によって dI/dV 強度は探針磁化と試料磁化の相対角度に依存し次式¹⁾で与えられる；

$$dI/dV \propto N_s N_t (1 + P_s P_t \cos \theta), \quad (1)$$

ここで、 N_s , N_t および P_s , P_t はそれぞれ試料(s)・探針(t)の局所状態密度とスピン偏極度である。実際の測定では、磁気コントラストが強い $V_s = -0.2$ V で、微分コンダクタンス (dI/dV) を STM の走査中に行えば、試料表面の微視的な構造(表面欠陥など)とスピン偏極電子状態(磁気状態)との相関を、同時に同じ場所から直接的に、ナノスケールで調べることができる。この手法により、反強磁性体特有の SF や磁区・磁壁の発現と表面欠陥や表面モロロジーとの相関関係が解明できる。

4. 研究成果

(1) 高品質な Cr(001)超薄膜の作製と表面ナノ構造・スピン偏極表面準位の検証

スピン偏極 STM 観察に、原子レベルで平坦なテラスと Cr(001) 清浄表面に特有なスピン偏極表面準位を有する高品位な Cr(001) 薄膜の作成が必要不可欠である。我々はすでに Au(001) 上に $t_{Cr}=4$ nm の Cr(001) 薄膜を最初の 2 nm は Cr を室温で成長させたのち、基板温度 570 K でさらに 2 nm を成長させる、成長温度が異なる 2 段階成長³⁾ が最適であることを見いだしている。

本研究の Au(001) 表面上 Cr(001) 超薄膜 (1~3 nm) では、3 nm-Cr 薄膜では同様な 2 段階成長法によって高品位な Cr(001) 薄膜の作成可能であったが、 $t_{Cr} < 1.5$ nm の Cr 薄膜では基板温度 570 K の 2 段階成長法では高品位な薄膜の作成は困難⁴⁾ であった。そこでまず、1.5 nm 厚 Cr 薄膜を 3 つの異なる条件で作成した薄膜の低速電子線回折 (LEED) と STM による表面ナノ構造の評価⁵⁾ を行った。図 2 に (a) 室温蒸着のみ・室温蒸着後 (b) ポストアニール (PA) 470 K ・(c) PA 520 K の実験結果を示す。いずれも清浄表面に現れる $p(1 \times 1)$ 構造を示す LEED パターンであり、Cr(001) 薄膜が Au(001) 表面上にエピタキシャル成長することが分かる。室温成長では diffuse した回折スポットが観測され STM 像からも原子レベルで平坦なテラスが形成されていないことが確認できる。PA 後は明瞭なスポットが観測され、原子レベルで平坦なテラスの形成を示唆する。しかし STM 観察の結果、PA のわずかな違いによって原子レベルで平坦なテラス幅に大きな違いがあることを観測した。すなわち (b) PA=470 K のテラス幅 10 nm 程度だが、(c) PA=520 K では 100 nm 程度まで広がる。すなわち室温蒸着後 520 K の熱処理によって原子レベルで平坦なテラス(テラス幅 > 100 nm) を有する高品位なエピタキシャル Cr(001) 薄膜が形成されることが分かった。この最適化された作成条件は、1.0 nm 厚 Cr 薄膜にも適用することができた。⁶⁾

図 2(d) には a) 室温蒸着のみ(c) 室温蒸着後 PA=520 K のトンネルスペクトルを示す。PA=520 K の試料では、フェルミ面近傍 ($V_s = -50$ mV) に明瞭なピークが観測される。このピークの起源は、Stroscio ら⁷⁾ によって報告されている Cr(001) 清浄表面に特有なスピン偏極表面準位である。これに対して室温蒸着だけの場合、明瞭なピークは観察されない。室温蒸着のみによる表面のラフネスが影響していると考えられる。

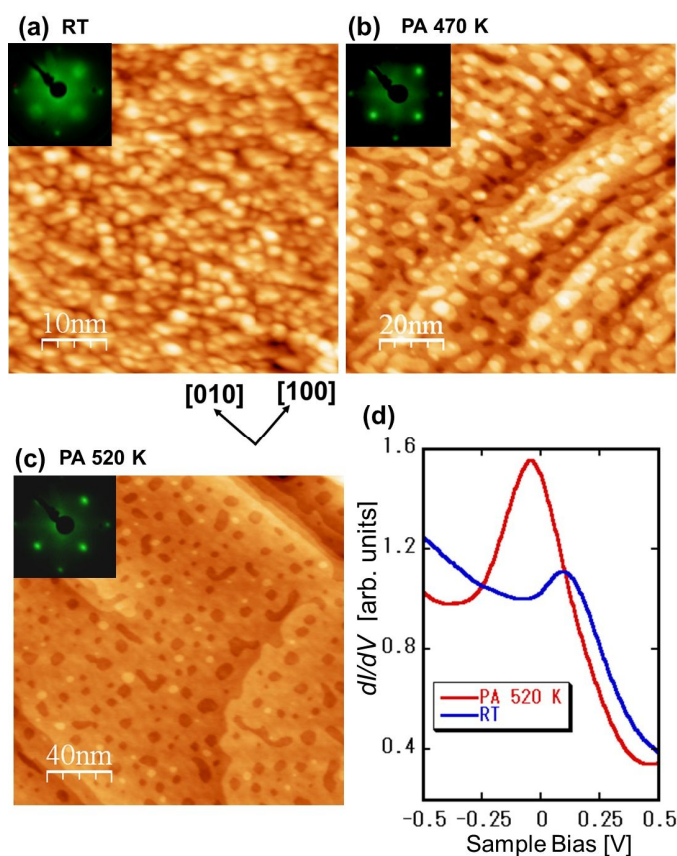


図 2 (a)-(c): 1.5 nm-Cr(001) 薄膜の STM 像と LEED 像 (a): 室温成長、室温成長後 (b) PA 470 K, (c) PA 520 K (d) 1.5 nm-Cr 薄膜のトンネル分光

(2) スピン偏極 STM を用いた Cr(001) 薄膜の表面ナノ磁気構造の実空間観察: Cr 膜厚 3nm

Cr(001)表面は、1原子層異なるごとにスピンの反転する層状(トポロジカル)反強磁性を示すことが知られている。この表面は、表面構造とその磁性に強い相関があるため、表面欠陥によってスピンフラストレーション(SF)を起こす典型であり、バルク Cr(001)表面ではスピン偏極 STM によって、2つのらせん転位間に SF によって反強磁性磁壁が発生・消滅することが報告⁸⁾されている。

図3に3nm Cr(001)薄膜の同時に同じ場所で観測した(a)形状像と(b)磁気(dI/dV)像を示す。形状像から原子レベルで平坦なテラス(50-100 nm)の配列とそのテラス上に形成された島が確認される。観察されたステップおよび島の高さは、全て Cr 原子層原子層高さ(0.144 nm)に相当する。いくつかのスパイラルテラスも観察され、その終端ではらせん転位が確認できる。図3には6個のらせん転位が存在する。(b)磁気像の白線、橙丸は同時に観測した形状像から得られた単原子ステップとらせん転位の位置を示し、また黄・青の磁気コントラストは面内磁化<100>方向を示す。この2つの像を比較することにより、磁気像では、テラスおよびテラス上に形成された島が1原子層異なるごとにコントラストが反転している。すなわち層状反強磁性を示す磁気像である。

Cr 表面の様な層状反強磁性体では、らせん転位が存在すると、そこで SF が発生し、層状反強磁性が変調を受ける。Kleiber ら⁸⁾は実際にバルク Cr 単結晶表面で、らせん転位に伴う SF によって、反強磁性磁壁が発生することを観測している。磁壁はらせん転位で発生・消滅しており、その幅は約 120nm であった。

しかし、われわれの薄膜試料でのらせん転位の密度は、バルク表面に比べて100倍以上高いため、バルク Cr 単結晶表面とは異なる2種類(type A, type B)の SF が観測された。(A)2つのらせん転位間の狭い180度反強磁性磁壁(図中“A”)、(B)奇数(3)個のらせん転位を結ぶ領域での SF (図中“B”)。type A-SF はバルク Cr 単結晶表面と Cr 膜厚 4nm 薄膜ですでに観測されたものであるが、type B-SF は我々の研究で初めて発見したものである。

奇数(3)個のらせん転位による SF を理解するため、実験とマイクロマグネティック・シミュレーション(MMS)による磁区構造の検証⁴⁾を行った。MMS では、層状反強磁性を再現するため、ステップで反強磁性、1原子テラスでは強磁性相互作用を考え、静磁エネルギーは無視した。MMS は1軸磁気異方性を仮定し Cr の物質定数を用い、OOMMF プログラムを用いて行った。図4に(a)実験、(b)MMS による磁区構造の比較を示す。(b)では赤(青)白はそれぞれ磁化が[100]方向に対して平行(反並行)垂直方向を表す。SF 領域はわずかに3個のらせん転位を結ぶ三角形から広がっており、実験の観測結果を定性的に説明することができる。

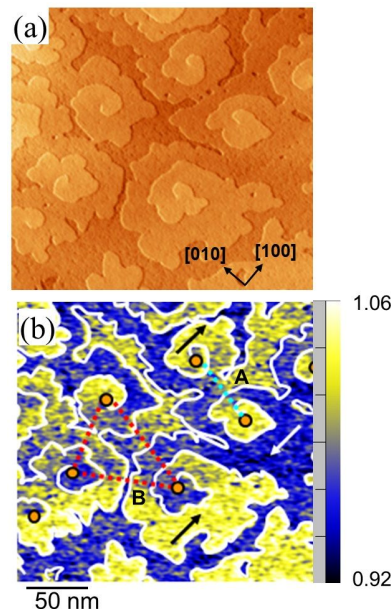


図3: 3nm-Cr(001)薄膜の
(a)形状像と(b)磁気像

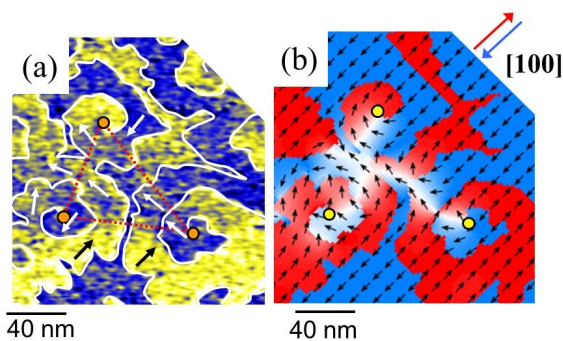


図4: 3個のらせん転位周辺の実験結果(a)とMMS(b)による磁区構造の比較

(3) 1.5 nm-Cr(001)薄膜 ($t_c=1.5$ nm) のスピン偏極 STM 観察

図2(c)に示すように Cr 膜厚 1.5nm の場合、室温蒸着後、PA = 520K によって、原子レベルで平坦なテラス(> 100 nm)と明瞭なスピン偏極表面準位を有する高品位な Cr(001)薄膜が形成される。図5(a)に1.5nm-Cr 薄膜の SP-STM (磁気) 像を示す。白線、赤丸は同時に観測した形状像から得られた単原子ステップとらせん転位の位置を示し、また黄・青の磁気コントラストは面内磁化<100>方向を示す。磁気像では(1)1原子層異なるごとに磁化方向が反転する層状反強磁性

に加え、(2) 2個のらせん転位間(左上A)、(3) 3個のらせん転位を結ぶ領域(真ん中下B)でのSFが観測された。図5(a)の180度反強磁性磁壁(type A-SF)の幅を、1軸磁気異方性を仮定して解析する⁵⁾と 3.8 ± 1.6 nmとなる。

さらに(4)右側のC領域(黒長方形)では、これまで観測されたことのないSFが観測された。

図5(b)にその高分解能磁気像を示す。詳細な解析を行った結果、隣接する2組のらせん転位によって生じた量子化軸が90度回転した反強磁性磁区である[図5(c)]と推定し、マイクロマグネティックシミュレーションによる検証⁵⁾も行った。反強磁性体では静磁エネルギーが無視できるため、その磁区形成過程には不明な点が多いが、スピン偏極STM観測から、反強磁性磁区形成メカニズムに関する知見が得られたと考えている。

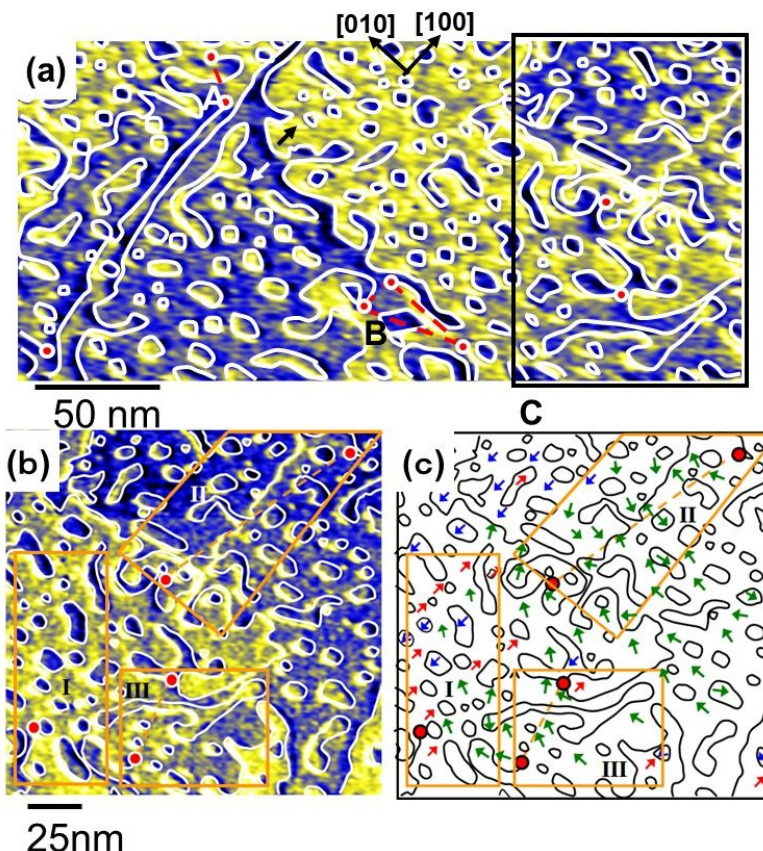


図5 : 1.5nm-Cr(001)薄膜の磁気像 (a:290nm × 138 nm, b: 170nm × 160 nm) (c) dI/dV 強度(b)からもとめた磁気構造

(4) 1.0 nm-Cr(001)薄膜 ($t_{Cr}=1.0$ nm) のスピン偏極STM観察

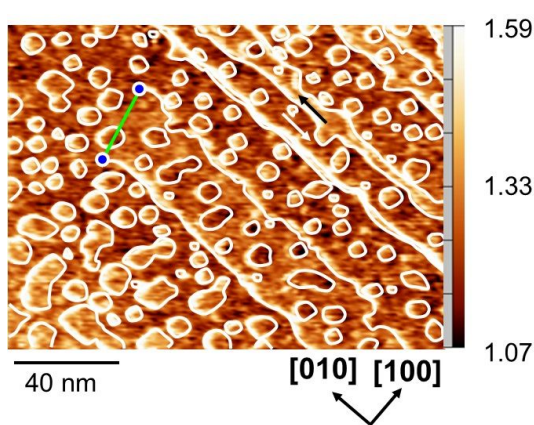


図6 : 1.0nm-Cr(001)薄膜の磁気像

1.0nm-Cr(001)薄膜でも室温蒸着後、PA = 520Kによって高品位 Cr(001)薄膜作成が可能である。その磁気像を図6に示す。同様に白線、青丸は同時に観測した形状像から得られた単原子ステップとらせん転位の位置であり、層状反強磁性が明瞭に観察される。その磁気像1.5nm-Cr薄膜と比較すると、らせん転位密度がおよそ40%減少するため、2つのらせん転位間の狭い180度反強磁性磁壁(type A-SF)だけが観測される。1nmと膜厚を減少させても、層状反強磁性が明瞭に観察されるだけでなく、らせん転位密度が半分以下に減少するため、広い領域でのSFも抑制⁶⁾される。この2点はCr薄膜を応用する観点からも極めて重要な知見であると考えられる。

<引用文献>

- 1) R. Wiesendanger, Rev. Mod. Phys. **81**, 1495 (2009).
- 2) Y.-F. Liew and G.-C. Wang, Surf. Sci. **227**, 190 (1990).
- 3) T. Kawagoe, Y. Iguchi, A. Yamasaki, Y. Suzuki, K. Koike, and S. Suga, Phys. Rev. **B71**, 014427 (2005).
- 4) T. Kawagoe, R. Oka, T. Miyamachi, and S. Suga, Phys. Rev. **B103**, 085427 (2021).
- 5) T. Kawagoe and S. Suga, Jpn. J. Appl. Phys. **62**, 045003 (2023).
- 6) T. Kawagoe, Jpn. J. Appl. Phys. **63**, 03SP58 (2024).
- 7) J. A. Stroscio, D. T. Pierce, A. Davies, R. J. Celotta, M. Weinert, Phys. Rev. Lett. **75**, 2960 (1995).
- 8) M. Kleiber, M. Bode, R. Ravlic, and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. **85**, 4606 (2000).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 T. Kawagoe, R. Oka, T. Miyamachi, and S. Suga	4. 巻 103
2. 論文標題 Odd spin frustration in Cr(001) films thinner than three nanometers revealed by spin-polarized scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 085427/1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.085427	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 T. Kawagoe and S. Suga	4. 巻 131
2. 論文標題 Growth and morphology of thin epitaxial Pd films on Au(001) film grown on Fe-buffered MgO(001) substrate	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 045302/1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0077468	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 Takeshi Kawagoe and Shigemasa Suga	4. 巻 62
2. 論文標題 Antiferromagnetic domain formation and spin frustration induced by adjacent paired screw dislocations in 10 monolayer-thick Cr(001) films	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 045003/1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/acc8aa	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 Takeshi Kawagoe and Shigemasa Suga	4. 巻 -
2. 論文標題 Odd spin frustration in ultrathin Cr(001) films studied by spin-polarized scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 2023 IEEE International Magnetic Conference - Short Papers	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/INTERMAGShortPapers58606.2023.10228587	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 Takeshi Kawagoe	4. 巻 63
2. 論文標題 Growth and surface magnetism of ultrathin Cr(001) films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 03SP58/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ad2654	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計6件(うち招待講演 0件/うち国際学会 3件)

1. 発表者名 川越 毅、宮町俊生、菅 滋正
2. 発表標題 3nm厚のCr(001)薄膜で観測された特異なスピンプラストレーション
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Kawagoe, T. Miyamachi, and S. Suga
2. 発表標題 Odd spin frustration on 3 nm-thick Cr(001) film
3. 学会等名 The 22nd International Vacuum Congress (IVC-22), Sapporo, Japan (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 川越 毅、菅 滋正
2. 発表標題 10原子層厚Cr(001)薄膜のスピンプラストレーションのSTM観察
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takeshi Kawagoe and Shigemasa Suga
2. 発表標題 Odd spin frustration in ultrathin Cr(001) films studied by spin-polarized STM
3. 学会等名 2023 IEEE International Magnetic Conference (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 川越 毅、菅 滋正
2. 発表標題 Cr(001)超薄膜の反強磁性磁区形成とスピンプラストレーション
3. 学会等名 第47回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takeshi Kawagoe
2. 発表標題 Growth and surface magnetism of ultrathin Cr(001) films
3. 学会等名 31st International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔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
---------	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------