

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：31308

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560027

研究課題名(和文) 金属/非金属グラニューラ磁性膜の低温スピン波

研究課題名(英文) Low-temperature magnetization dynamics of TM-Al-O (TM=Fe and Co) granular magnetic 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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円、(間接経費) 1,230,000円

研究成果の概要(和文)：ブリルアン散乱による金属磁性膜からの低温磁気光散乱測定を行うために無冷媒冷凍装置とBLS装置を整備した。300K～15Kの温度範囲と2.0kOe～4.5kOeの磁場中で超常磁性Co-Al-Oグラニューラ膜からの磁気散乱測定を行い、強磁性スピン波と類似した磁気散乱スペクトルの観測に成功した。

金属超常磁性膜の磁気散乱スペクトルの定量解析に必要な理論式を導出した。この理論式を用いた解析の結果、150K付近を中心として磁気散乱ピークの振動数と半値幅に異常な温度変化を見いだした。この異常な温度変化は、微粒子磁化の歳差運動と10ps程度の緩和時間を持つ磁化の緩和過程が結合した結果と解釈できる。

研究成果の概要(英文)： We prepared a closed-cycle refrigerator for low-temperature Brillouin light scattering (BLS) study under external magnetic fields. We also improved the performances of our BLS apparatus for long spectrum-accumulation. With these apparatus we successfully observed scattering from super-paramagnetic (SPM) excitations for Co-Al-O films in a temperature range of between 300K and 15K under magnetic fields of between 2.0kOe and 4.5 kOe.

We developed a theoretical model for SPM BLS spectrum. We could analyze the observed spectra with the theoretical model. We found an anomalous temperature behavior of the peak frequency and width at around 150 K. This anomalous behavior can be attributed to a dispersion effect due to a coupling between precession of particle magnetization and relaxation with a low activation energy and a fast relaxation time of an order of 10 ps.

We are planning extensive BLS studies of spin waves from ferromagnetic thin films at low temperatures under magnetic fields.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学 電子・磁気物性

キーワード：磁性薄膜材料 レーザー分光学 ブリルアン散乱 磁化動力学 低温

1. 研究開始当初の背景

TM-Al-O (TM=Fe, Co) に代表される金属 / 非金属ナノ構造グラニューラー磁性膜は、特異的な電気・磁気物性に関する物理的興味に加えて、スピントロニクス分野への応用からも注目されている。例えば、高磁気抵抗・軟磁性 Fe-Al-O グラニューラー膜は GHz 帯で動作する高周波書き込み用ヘッド等への応用、Co-Al-O グラニューラー膜は巨大磁気抵抗素子への応用が期待されている。このグラニューラー磁性薄膜材料の分野ではわが国の研究者が材料開発・特性改善に向けた研究を活発に進めている。

研究代表者は 1989 年以来、スピン波ブリルアン散乱法 BLS (Brillouin Light Scattering) を薄膜、超薄膜、人工格子等の種々の磁性膜に適用し、BLS が磁性膜の磁気定数決定にとどまらず、表面・界面の磁気構造や磁気相互作用の強力な研究手段であることを明らかにしてきた。平成 17-18 年度基盤研究 (C) 「Fe-Co-Al-O グラニューラー膜のレーザー分光研究」(課題番号:17560586)、平成 19-20 年度基盤研究 (C) 「金属 / 非金属グラニューラー磁性膜の磁化動力学」(課題番号:19560669) により次の重要な成果が得られた。

(1) 超常磁性 $\text{Co}_{51}\text{Al}_{18}\text{O}_{31}$ 膜のスピン波は、外部磁場による微粒子磁化の整列にともないゼロ磁場における緩和型スペクトルから外部磁場誘起強磁性状態における伝播型スピン波スペクトルに移行する。しかし、強磁性微粒子間には交換相互作用は働いておらず、静磁気的な磁気双極子相互作用がスピン波振動数を決めている。

(2) 強磁性 TM-Al-O (TM=Fe, Co) 薄膜では微粒子間に交換相互作用が作用し、有効磁場 H_E の形で表わされる。膜の電気抵抗 ρ と有効磁場の間に逆二乗則 $\rho \propto (H_E)^{-2}$ が成立する。この結果は強磁性 TM-Al-O 薄膜の電気伝導機構と微粒子間に働く有効交換相互作用の発生機構が強く関連していることを示唆し

ている。

この研究成果を論文にまとめる際、論文の完全性確保のためにという程度の意識で BLS 測定に用いた強磁性 TM-Al-O (TM=Fe, Co) 薄膜の電気抵抗率の温度依存性を東北大金研低温物質科学研究室に依頼して測定した。しかし、その結果から想定外の新しい電気伝導・磁気物性研究への道が開かれた。即ち、磁性金属元素の種類を問わず全ての強磁性試料で近藤効果的抵抗極小が観測され、概ね 30K 以下で $-\log T$ 項が、50K ~ 140K では T^2 項が支配的となるが、通常フォノン散乱による T^5 項は全く観測されなかった。強磁性 Co-Al-O 薄膜における $-\log T$ 項の存在は 1990 年代後半に既に東北大学の研究者により報告されていたが、研究面においてそれ以上の進展はなかった。 T^2 項に関してはこれまで全く言及されていない。BLS により強磁性スピン波が観測されていることから、 T^2 項の起源としては強磁性マグノンによる電子散乱が考えられる。この T^2 依存性は強磁性マグノンによる電気抵抗理論の予測とも一致する。

さらに、TM-Al-O グラニューラー膜は電気抵抗のみならず磁性においても顕著な異常性を示すことが明らかになった。磁化履歴曲線測定から室温では数 Oe 程度であった軟磁性膜 Co-Al-O 膜の保持力が 100 K 以下の温度で急激に増大し、4.2 K では室温値より 2 桁も大きくなることを見出した。それに対し、Fe-Al-O 膜ではそのような保持力の異常な温度変化は認められず、低温でも室温値がほぼ維持される。この新奇な現象の起因は未だ不明であるが、一軸磁気異方性を持つ Co-Al-O で異常が見られ、一軸磁気異方性を持たない Fe-Al-O 膜では異常が現れないことから、一軸磁気異方性の存在と深く関連していることが予想された。

ともすれば、室温における特性改善に目が向けられがちな実用磁性材料に対して、低温

で新しい磁気物性の発現と新規な機能性開発への可能性が期待される。

2. 研究の目的

これまで室温に限定されてきた金属磁性膜の BLS スピン波測定を 10 K 以下の温度域まで拡張し、TM-Al-O (TM=Fe, Co) 強磁性薄膜の微粒子間交換相互作用の発生機構と電気伝導機構との関連、さらには低温における保持力の異常増加の発生機構を総合的に解明することを本研究の目的とする。

申請者は東北大在職時に自作の液体 He クライオスタットを用いて強磁性半導体 EuS のスピン波を 7 K まで測定した経験もあり（未発表）往時に比べて格段に性能が向上している現有装置を用いれば 10 K 以下の低温でも磁気定数決定は可能と判断している。これらの低温 BLS 測定結果を電気伝導測定や保持力測定の結果と組み合わせることで、TM-Al-O (TM=Fe, Co) 強磁性薄膜で見出した微粒子間交換相互作用の発生機構と電気伝導機構との関連、さらには低温における保持力の異常増加の発生機構を総合的に解明することを本研究の目的とする。

3. 研究の方法

本研究は、申請段階では平成 23 年度からの研究開始を前提として実施計画を立てていたが、平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災による長時間の強い地震動とその後の巨大津波のため、大学が立地する石巻市は言語に絶する被害を受けた。大学自体は津波からの被害を免れたものの、建物の 3 階に位置する実験室に設置された精密研究機器には地震動による深刻な被害が生じた。防振対策を施していた分光器本体には被害はなかったが、水冷式アルゴンレーザーを含む幾つかの主要機器は廃棄処分となった。結局、平成 23 年度は教育環境整備、実験機器修理・交換・廃棄に追われ、研究活動を停止せざるを得なかった。当初の平成 23 年度からの 3

年計画を平成 24 年度からの 2 年計画に変更して実施することとした。平成 24 年に入ってから徐々に震災前の状況に復帰し、研究・教育活動も正常化に向けて動き出した。

(1) 低温測定装置改造

現有の BLS 装置を用いれば、TM-Al-O 磁性薄膜の室温スピン波散乱は確実に観測できる。分光測定用無冷媒冷凍機一式を保有しており、水冷式電磁石の磁極間に冷凍機の試料ホルダー部分を挿入できるように改造することで、温度・磁場変化が測定できる。改造の結果、最大外部磁場 0.45 kOe までの磁場中において、室温 300 K から 10 K までの温度範囲の測定を可能にする。

(2) コンピュータ制御による分光器安定化

現有ブリルアン散乱装置は、圧電素子による掃引方式を採用することにより、スペクトルの繰り返し積算による S/N 比改善と分光器の動的安定化方式を実現している。低温測定を行うに際して必要となる長時間のスペクトル積算を安定に行うため、現有装置への改造を行う。

測定用 PC の更新

分光器の動的安定性を改善するための繰り返し動作の高速化と高速データ処理

コンピュータによる分光器制御

以上の準備の下で、TM-Al-O (TM=Fe, Co) グラニューラー膜の BLS 測定を行う。

4. 研究成果

平成 23 年度

研究室に設置していた精密機器の被害状況調査と動作確認を行った。外見からは被害状況の調査と動作確認ができないので、装置全体を再度組み上げたうえで調査する必要があり、震災後のほぼ 1 年を費やした。

平成 24 年度

(1) 低温測定装置改造

無冷媒冷凍機の改造は震災前に既に終わっていたが、震災による損傷検査と部分的な修繕の結果、最大外部磁場 0.45kOe までの磁

場中において、室温から 10 K までの温度範囲で冷凍機を使用することが可能になった。この結果、低温分光実験では不可避な長時間の連続実験、最大 12 時間以上の連続測定が可能となった。

(2) コンピュータ制御による分光器安定化

(株)東北電子産業に依頼して、コンピュータプログラムの作成とコンピュータによるデータ収集システムを作成した。分光器のコンピュータ制御と最短繰り返し時間 1 秒、最大データ容量 4 k (4096 点) で最大測定時間 8 時間のデータ収集が可能になった。8 時間のスペクトルデータ (エクセル CSV 形式) に対して接続処理を行うことで、任意時間の測定へ拡張できる。これまでは、最短分光器掃引時間 5 秒でデータ容量 512 点 (0.5 k) が上限であった。

(3) 青色 DPSS レーザー

震災前、光源として水冷式アルゴンイオンレーザー (488 nm, 515 nm) と緑色 DPSS レーザー (532 nm) を所有していたが、アルゴンレーザーは破損により使用不能、緑色 DPSS レーザーは地震動により内部共振器の調整に狂いを生じたため、製造元 (英国) に送り返して調整せざるを得なくなった。アルゴンレーザーに代わる光源として、平成 23 年度基盤研究費の繰り越し分と平成 24 年度配分研究費により青色 DPSS レーザー ((株)昭和オプトロニクス、波長 473 nm, 出力 50 mW) を購入した。

(4) シャッターとしての音響光学素子

分光器の動作速度の高速化が達成された結果、これまで光電子増倍管の過負荷保護に用いてきた機械的シャッターが制御信号に追従できなくなった。マイクロ秒の応答動作が可能な音響光学素子 (AOM) を新たに導入した。1 台の AOM によるレーザー光の減衰率は最大 10% であるため、偏光子と組み合わせ用いている。

これらの装置改良を行った結果、測定装置

としては震災前の状態を上回る性能を達成した。以上の準備の下、卒業研究が一段落となった年明けから実験に着手した。震災前から既に測定に着手していた超常磁性 Co-Al-O 膜について、低温までの測定を開始した。

平成 25 年度

平成 24 年度に BLS 測定装置の整備を行った結果、震災前の状態を凌ぐ性能を達成することできた。しかし、平成 25 年度から任期 2 年の理工学部長に選出されたことにより、それまでの教育業務に加えて学部長としての業務が新たに加わることとなった。低温の分光実験には数時間の連続測定が必要なことから、実験に従事できる時間が殆ど取れない状態になった。

幸い、5 月に博士 (理学) の学位を有するアルバイト実験補助者を確保できたことから、6 月から補助者に分光器の調整法を含む装置の取り扱いを教育した。BLS 実験では、まず光の波長の精度 ($\sim 0.5 \mu\text{m}$) で分光器を調整する必要がある。この調整には高度の実験技術と経験が要求されて、調整の良し悪しが測定の成否を決定すると言っても過言ではない。実験補助者が実際に実験に従事できるレベルに達するまでに約 6 ヶ月の期間がかかったが、装置の立ち上げから分光器の調整までを任せられるようになったことから、代表者の実験負担は大きく軽減された。

(1) 超常磁性 Co-Al-O 膜の BLS 測定

震災前に行った室温測定と一部の低温測定結果から、超常磁性膜では温度降下による長距離磁気秩序は形成されないにもかかわらず、強磁性膜スピン波的な磁気散乱スペクトルが観測されていた。ピーク幅は強磁性スピン波に比べ圧倒的に広く、コヒーレントな磁化の歳差運動状態ではないことが分かるが、この磁気散乱ピークが温度低下に伴い強磁性的なスピン波に移行するの否かに興味がある。平成 25 年当初から測定を開始した。青色レーザーを用いた場合、15K の低温

においても、約 5 時間程度のスペクトル積算により磁気散乱スペクトルを測定することができた。4.0 kOe の磁場中における温度変化の測定例を図 1 に示す。

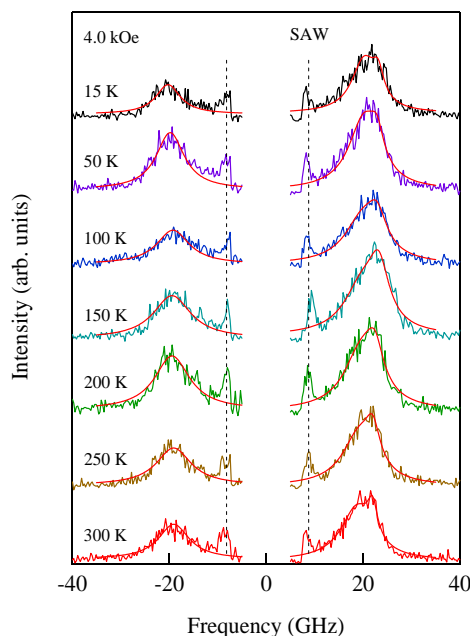


図 1 超常磁性散乱スペクトルの温度変化

最終的に、0.2 kOe ~ 0.45 kOe の磁場範囲において、室温 300 K から 15 K の全温度範囲において磁気散乱スペクトルを観測することに成功したことにより、課題研究開始時に設定した「低温 BLS 実験測定の実施」に関して目標を達成できた。

(2) スペクトルの定量的解析式の導出

超常磁性状態では、有限温度において長距離磁気秩序が形成されないことから、分子場的考察から交換相互作用を無視することが第一近似として正当化されるであろう。この場合、Green 関数法と線形応答理論を適用して、BLS 微分散乱断面積を解析的にも求めることが出来る。複雑な計算の後に、測定された BLS スペクトルは表面磁気波とバルク磁気波から成る、単純なローレンツ曲線の重ね合わせとして表されることが示され、測定スペクトルに対して定量的な数値解析を実行出来る表式を導出することに成功した。図 1 の実線が理論曲線である。この結果、磁気光

学定数や基板や磁性膜の光学定数が必要にはなるが、これまでのピーク位置と半値幅に頼った議論を更に物質定数の議論まで進化させることが可能になった。

(3) 磁気励起と磁化緩和過程

スペクトルに対する理論式を用いて測定結果を解析したところ、150 K 付近を中心としてピーク振動数と半値幅に異常な温度変化が見出された。この振る舞いは磁化の歳差運動と緩和の結合として解釈できることが分かった。緩和の活性化エネルギーとしては室温程度、10 ps 程度の緩和時間を持つことが期待される。詳細は現在検討中である。

(4) 今後の研究と展望

平成 24 年度の本課題研究の開始直前に発生した東日本大震災により大学所在地の石巻市が甚大な被害を蒙り、当初研究計画の大幅変更を余儀なくされた。加えて、最終年度の平成 25 年度には研究代表者が学部長に選出され、学部長事務に忙殺される状況となったが、震災復興と歩調を合わせた平成 24 年度以降の研究努力の積み重ねにより、最終的には、室温から 10 K 程度までの温度領域で磁性材料の磁場中 BLS 測定を可能にした。しかし、研究目的の一つに設定した TM-AI-O (TM=Fe, Co) 強磁性グラニューラー膜の低温スピノ波研究が未達成であり、今後の実施を計画している。

本研究のもっとも重要な成果は、磁気物性物理学のみならず、材料物性工学への貢献も含めて、低温における特性・物性評価としての新しい実験手法が確立されたと言うことが出来る。特に、低温における磁性膜の BLS 測定を実施できる研究機関は世界的にも稀有であることを強調したい。

申請研究開始直前に発生した巨大自然災害に加えて学部長職への選出も経験したが、研究者にとって不利な状況にめげることなく、着実に目標に向かって前進できたことは大きな収穫であった。なお、超常磁性膜につ

いての研究結果は、原著英文論文として投稿準備中である。

本研究の拡張として、磁性材料に限らず、結晶の低温音波測定まで研究対象を拡張することが可能になった。物性物理学や材料学へ大きく貢献できる体制が整ったことを繰り返し強調したい。

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 2 件)

[1] S. Nakamura, T. Iwashita, T. Nojima, A. Yoshihara, S. Ohnuma and H. Fujimori: Transport and magnetic properties of ferromagnetic Co-Al-O and Fe-Al-O granular films J. Phys. Condensed Matter: Conference Series **266**, No. 012019 (1-6) (2011). (査読付き)

[2] S. Nakamura, T. Nojima, A. Yoshihara, and S. Ohnuma: Temperature dependence of the coercive force of ferromagnetic TM-Al-O (TM=Fe, Co) granular films

J. Kor. Phys. Soc. **63**, pp.773 - 777 (2013). (査読付き)

[学会発表](計 5 件)

[1] 吉原 章, 中村慎太郎, 大沼繁弘, 野島勉: 超常磁性 Co-Al-O グラニューラ膜の磁気励起ブリルアン散乱, 第 35 回日本磁気学会学術講演会 (新潟市, H23, 9 月).

[2] S. Nakamura, T. Nojima, A. Yoshihara and S. Ohnuma: Temperature dependence of the coercive force of ferromagnetic TM-Al-O (TM=Fe,Co) granular films, The 19-th International Conference on Magnetism (ICM-2012) (Busan, Korea, H24, 7 月).

[3] 中村慎太郎, 吉原 章, 大沼繁弘, 野島勉: 強磁性 Co-Al-O グラニューラ膜の低温磁化と交換バイアス, 日本物理学会第 68 回年次大会 (広島大学, 東広島市, H25, 3 月).

[4] 中村慎太郎, 吉原 章, 大沼繁弘, 野島勉: 強磁性 TM-Al-O (TM=Fe, Co) グラニューラ膜の保持力の温度変化, 第 37 回日本磁気学会 北大工学部 (札幌市, H25, 9 月).

[5] 吉原 章, 三浦洋平, 中村慎太郎, 野島勉, 大沼繁弘: 超常磁性 Co-Al-O 膜の低温磁気光散乱, 第 37 回日本磁気学会 北大工学部 (札幌市, H25, 9 月)

[図書](計 0 件)

[産業財産権]
出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]
ホームページ等

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