

Fe(110) ウィスカ単結晶上 Ni 超薄膜の bcc-fcc 構造

川崎 巧、山田 豊和
(千葉大院融合)

Bcc-fcc structures in ultrathin Ni films on Fe(110)

Takumi Kawasaki, Toyo Kazu Yamada
(Chiba Univ.)

磁性金属の bcc-fcc 相転移では、結晶構造の変化が磁気構造に直接影響する。特に電界によりこのような相転移（磁気電気結合）が制御できれば、新たな電界制御型磁気デバイスの創成につながる。

本研究で我々は bcc-Fe(110)/fcc-Ni(111) 界面での結晶・電子構造、および電界による相転移制御を探った。自作した極低温・超高真空・走査トンネル顕微鏡 (STM) 装置を使用した。試料および探針の作成および清浄化・平坦化は準備槽で行い、超高真空を破ることなく解析槽に移動し STM 測定を行った。低速電子線回折 (LEED) は準備槽にある。また、STM 本体はクライオスタットに接続されている。STM 測定は 7K および 300K で行った。

平坦かつ不純物の少ない bcc-Fe(110) 基板を得るためにウィスカ単結晶を化学気相成長させた。長軸方向が $\langle 111 \rangle$ であり側面に 6 つの (110) 面を持つ。超高真空内に導入しアルゴンスパッタを 870K に加熱しながら行うことで平坦・清浄な Fe(110) 表面を得た。準備槽で Fe(110) 上に Ni を 0.5~3.0 MLs 室温で蒸着した。LEED および STM 観察結果から、Ni 薄膜は Stranski-Krastanov 成長することが分かった。1 層目の膜成長過程ではランダムな形状の島が観察されたが、2 層目以降は鉄基板の $\langle 111 \rangle$ 方向に沿って島が成長した。1 層目の表面で、長さ・間隔が不規則な縞模様が観察された。縞模様は特定の 2 方向に沿っていた ($\langle 111 \rangle$ より 10 度ずれ)。1 層目の原子像から縞模様上の Ni 原子の 2 次元構造は fcc (111) 面と同じ六回対称性であった。同じ層内で六回対称性でない領域では格子に歪みが存在した。このように 1 層目は縞模様の領域と格子歪み領域に分けられ、それらの高低差は 15pm 程であった。縞模様領域 (fcc) と歪領域 (bcc-like) で STM 分光測定を行い、電子状態密度に明らかな違いが見られた。同じ Ni 原子層内であっても原子構造の違いが局所電子状態に大きく影響していた。

さらに、この Ni 単原子膜に探針から強い電界を印加した。高電界を印加しながらスキャンした領域では縞模様が消え、構造的な相転移が観察された。スキャン前後で歪領域の高さが変わり、縞模様領域の高さと一致した。つまり、歪領域の原子配列が fcc(111) 構造へと相転移して、スキャンが行われた全ての領域が一様な高さとなり縞模様が消えた。この結果から、鉄基板上の Ni 薄膜の 1 層目に強い電界を印加することで、構造的な bcc-fcc 相転移が起きることが判明した。

室温・単一有機分子磁気接合の創成

山田 豊和¹, 山岸 祐平¹, 北岡幸恵², 中村浩次²
(千葉大院融合¹, 三重大工²)

Engineering of 300 K single organic molecular magnetic junction
Toyo Kazu Yamada¹, Yuhei Yamagishi¹, Yukie Kitaoka², Kohji Nakamura²
(Chiba Univ.¹, Mie Univ.²)

単一分子の π 電子と磁性金属の3d電子スピン状態の混成の理解と制御は新たなナノ分子磁気デバイスの発展に必要不可欠である^{1),2),3),4)}。単一分子に関する研究は主として極低温環境下で行われてきた。温度を上げると単一分子が熱拡散するためである。しかし、これでは実用的なデバイスとならない。

我々は、室温でも壊れることない単一分子磁気接合を実現するため、理論計算による推測と走査トンネル顕微鏡 (STM) 実験による実証を組み合わせ研究を行ってきた。種々の素材の中で本研究では Fe(001) 基板に注目した。計算より、室温で有機分子の熱拡散が確認されている Ag(001) 基板に比べ、分子の吸着エネルギー及び拡散障壁が4倍以上の高いと分かったからである。

単一有機分子が室温でも熱拡散せずに安定な接合を作成するかを実証するために、本研究では走査トンネル顕微鏡 (STM) を使用した。試料作製および全ての測定は超高真空中、300Kで行った。単一有機分子として π 電子系・メタルフリーのフタロシアニン分子 (H2Pc) を使用した。昇華精製した分子を坩堝にいれ超高真空中で基板に吸着した。原子レベルで平坦かつ不純物が1%以下の Fe(001) 基板を作成するためにウイスカ単結晶を化学気相成長させた。超高真空中、870Kでアルゴンスパッタを行うことで清浄かつ平坦な基板表面を得た。原子像から結晶方向を確認した。0.2分子膜分を Fe(001) に室温で吸着し STM 観察した。室温であっても単一分子として確認できた。STM 連続観察を行い分子は熱拡散しないことを確認した。さらに STM 探針によるマニピュレーションを試みたが成功しなかった。非常に強く基板に結合していることを確認した。⁵⁾

Fe(001)-H2Pc 間の強結合は、基板の3d軌道と分子の π 軌道の重なり起因する。STM分光法による dI/dV 曲線測定およびトンネル確率関数規格化法を用いて、Fe(001) 基板上の単一有機分子の電子状態密度の再現に成功した。メタルフリーにもかかわらず分子の中心近傍が強く基板と相互作用する。フェルミ準位近傍に4つの電子状態ピークを確認した。理論計算はこの4つのピークを再現し、磁性金属分子界面での電子結合のメカニズムを解明した。少数スピン状態側では鉄3d軌道とLUMOが相互作用しフリー状態よりエネルギー位置はシフトするが、多数スピン状態側では相互作用しないためピーク位置はフリー状態と同じになる。高スピン偏極した3dとLUMO(またはHOMO)がうまく重なるような分子と基板を選択すれば、人工的にスピン分極させハーフメタルのような界面形成も可能となる。

参考文献

- 1) Y. Yamagishi, S. Nakashima, K. Oiso and T. K. Yamada, Nanotechnology, 24 巻, pp.395704, 2013 年.
- 2) A. Bagrets, S. Schmaus, T.K. Yamada, W. Wulfhekel, et al., Nano Letters, 12 巻, pp.5131, 2012 年.
- 3) T. Miyamachi, T.K. Yamada, W. Wulfhekel, et al. Nature Communications, 3 巻, pp.938, 2012 年.
- 4) S. Schmaus, T.K. Yamada, W. Wulfhekel, et al., Nature Nanotechnology, 6 巻, pp.185, 2011 年.
- 5) T.K. Yamada, Y. Yamagishi, Y. Kitaoka, and K. Nakamura, submitted.

原子層スケールでみたグラフェン/ニッケル界面の電子スピン状態

境 誠司*, 松本吉弘***, 圓谷志郎*, 檜本 洋*, 小出明広***, 藤川高志***, 山内 泰****, 雨宮健太*****
 (*原子力機構先端セ, **総合科学機構, ***千葉大院融合科学, ****物材機構, *****高エネ研物構研)

Electronic spin states of graphene/nickel interface investigated at atomic-layer scale

S. Sakai, Y. Matsumoto, S. Entani, H. Naramoto, A. Koide, T. Fujikawa, Y. Yamauchi, K. Amemiya
 (JAEA, CROSS, Chiba Univ., NIMS, KEK)

はじめに

グラフェンは、スピンデバイスの高度化を拓く長距離スピン輸送材料や分子性材料をスピントロニクスに用いるためのベース材料として注目されている。グラフェン基デバイスの研究では、グラフェンへのスピン流の導入やグラフェン内のスピン流の操作を効率的に行うスピン流制御技術の実現が課題である。グラフェンのスピン輸送材料としての利点であるスピン軌道相互作用の小ささや強い磁性を示さないことは、同時にスピン流の制御には工夫が必要であることを意味する。グラフェンでは全原子が表面(界面)に曝されることから、効率的スピン流制御の実現にはグラフェンと磁性材料等との界面スピン物性の活用が鍵になるであろう。

本研究では、界面スピン物性の活用に向けた基盤的知見を得るため、グラフェン基デバイスの基本構造であるグラフェン/磁性金属界面の電子スピン状態を、原子層スケールの深さ分解能を有する深さ分解 X 線磁気円二色性(XMCD)分光[1]と三重項励起状態のスピン偏極 He 原子が物質最表面と相互作用して生じるスピン選択的脱励起過程を利用した表面スピン検出法(スピン偏極準安定脱励起分光法, SPMDS)[2]を用いて調べた。

実験方法

超高真空中で 600°C に保持した単結晶状の Ni(111) 薄膜(厚さ:30 nm)にベンゼンガス(前駆体)を曝露して、厚さが一原子層のグラフェン(単層グラフェン, SLG)が Ni(111) 表面を完全に被覆するようにエピタキシャル成長した SLG/Ni(111) 薄膜の試料を作製した。深さ分解 XMCD 分光及び SPMDS の測定は、作製した試料を超高真空中に保持したまま行った。

実験結果

深さ分解 XMCD 分光[3]の結果、SLG/Ni(111) 界面から数原子層の領域で、Ni 薄膜の容易磁化方向が面内から面直方向に変化することが明らかになった(Fig.1)。また、界面の Ni 原子の磁気モーメントは結晶内部より 20% ほど減少した。一方、SLG は、界面の Ni 原子層との相互作用により伝導に関与する π バンドの電子状態が変化し交換結合が生じること、スピン軌道相互作用の増大が生じることが分かった。さらに SPMDS の結果[4]、SLG はフェルミレベルにおいて Ni と逆符号のスピン偏極を持つことも明らかになった。本研究で明らかになった磁性金属との界面に特有な電子スピン状態は、磁性電極からのスピン注入効率やナノ構造磁性体の磁気異方性に影響を及ぼすことが考えられ、グラフェン基デバイスの特性制御や機能設計への活用が期待される。

参考文献

- 1) K. Amemiya, Phys. Chem. Chem. Phys. **14**, 10477 (2012). 2) Y. Yamauchi *et al.*, Appl. Surf. Sci. **169-170**, 236 (2001). 3) Y. Matsumoto *et al.*, J. Mater. Chem. C **1**, 5533 (2013). 4) S. Entani *et al.*, Carbon **61**, 134 (2013).

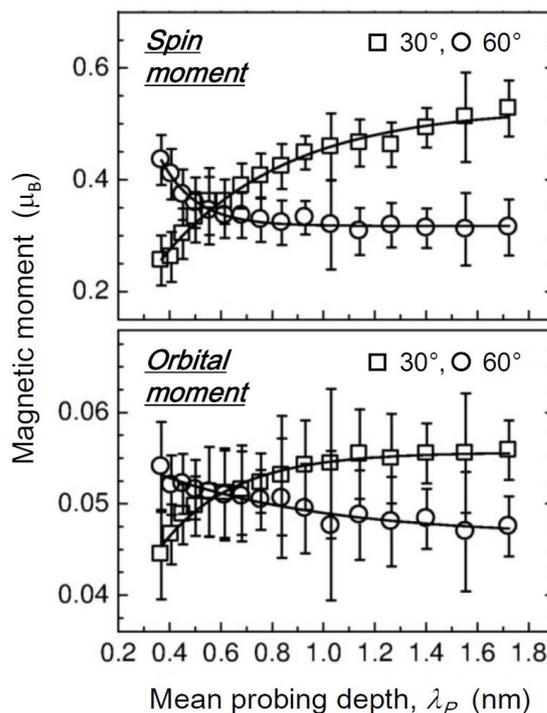


Fig.1 Mean probing depth, λ_p , dependences of the effective spin and orbital magnetic moments in the directions of 30° and 60° to the sample surface Preferable orientations of the moments change from in-plane to out-of-plane as can be deduced from the relative magnitude change in the region of a few Ni atomic layers from the interface ($\lambda_p < 1$ nm).

FeAl 合金における磁気特性の照射レーザー波長依存性

吉田裕***、渡辺精一**、海住英生***、西井準治***、吉見享祐****

(*北大創成、**北大工エネマテ、***北大電子研、****東北大工)

Irradiated laser wavelength dependence on magnetic properties of an FeAl alloy

Y. Yoshida***, S. Watanabe**, H. Kaiju***, J. Nishii*** and K. Yoshimi****

(*Hokkaido Univ. CRIS, **Hokkaido Univ. CAREM, ***Hokkaido Univ. RIES, ****Tohoku Univ.)

はじめに

最近、我々は $\text{Fe}_{52}\text{Al}_{48}$ 合金表面にナノ秒パルスレーザーを照射すると、その表面形態がストライプ構造に変化すると同時に、磁気相が常磁性から強磁性に転移することを明らかにした[1]。さらに、このストライプ構造 FeAl 合金の磁気特性をより詳細に調べた結果、磁化反転機構が磁壁移動モデルで説明できることを明らかにした[2]。本研究では、ナノ秒パルスレーザー照射したストライプ構造 FeAl 合金において、その磁気特性の照射レーザー波長依存性を調べることを目的とした。

実験方法

$\text{Fe}_{52}\text{Al}_{48}$ 合金表面へのナノ秒パルスレーザー照射には Nd:YAG パルスレーザーを用いた。パルス幅は 6 ns、繰り返しパルス周波数は 2 Hz、パルス数は 200-300 パルス、平均レーザーエネルギー密度は 1.24 kJ/m^2 、波長は 355, 532 nm とした。表面ナノ構造解析には走査型電子顕微鏡(SEM)、電子後方散乱回折(EBSD)、原子間力顕微鏡(AFM)を用いた。磁気特性評価には集光型面内磁気光学カー効果(MOKE)法を用いた。最大印加磁場は 2 kOe、面内印加磁場回転角は $0-90^\circ$ 、観測スポットサイズ径は $3 \mu\text{m}$ 、測定温度は室温とした。

実験結果

図 1 にストライプ構造 FeAl 合金の表面磁化曲線を示す。図 1(a) 及び(b)はそれぞれレーザー波長 532, 355 nm で照射したときの結果である。ここで、磁場回転角 θ はストライプの長手方向と磁場のなす角度と定義した。図 1(a) より $\theta=2.3^\circ$ では保磁力が 57 Oe であることにに対し、 $\theta=73^\circ$ では保磁力が 190 Oe となりやや増大する。図 1(b) より $\theta=8.4^\circ$ では保磁力 93 Oe であることにに対し、 $\theta=67^\circ$ では保磁力が 572 Oe となり大きく増大する。図 2 に保磁力の面内磁場回転角依存性を示す。実線と点線は磁壁移動モデルによる計算結果である。図 2 より、保磁力の磁場回転角依存性は磁壁移動モデルによる計算結果と良い一致を示すことがわかる。講演では、構造解析結果に加え、より詳細な磁気特性結果を報告する。

参考文献

- [1] Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishibashi, and K. Yoshimi: Appl. Phys. Lett. **102** 183109 (2013).
 [2] H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: J. Appl. Phys. **115** 17B901 (2014).

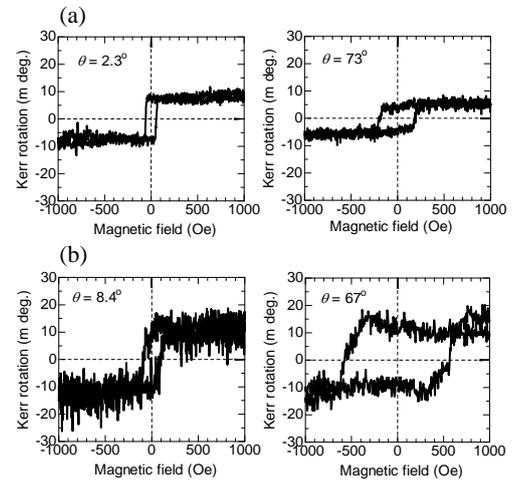


図 1: ストライプ構造 FeAl 合金の表面磁化曲線(照射レーザー波長 λ : (a) 532 nm、(b) 355 nm)。

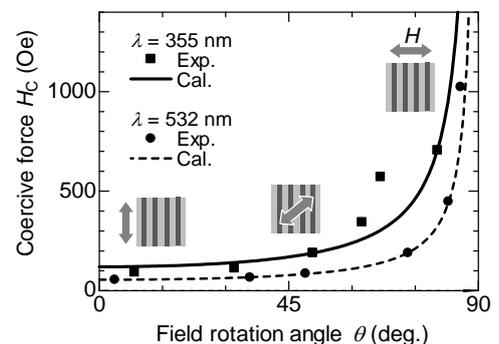


図 2: 保磁力の磁場回転角依存性。

電気磁気効果と界面磁化を示す α - $\text{Cr}_2\text{O}_3(0001)$ 薄膜による 垂直交換バイアスの特性

豊木研太郎¹, 白土 優¹, 中村哲也², 播本祥太郎¹, 尾上 聡¹, 野村 光¹, 三俣千春³, 中谷亮一¹

1 大阪大学大学院工学研究科

2 高輝度光科学研究センター (JASRI) / SPring-8

3 物質・材料研究機構 (NIMS)

Perpendicular exchange bias using magneto-electric α - $\text{Cr}_2\text{O}_3(0001)$ thin film with boundary magnetization
Kentaro Toyoki¹, Yu Shiratsuchi¹, Tetsuya Nakamura², Shotaro Harimoto¹, Satoshi Onoue¹, Hikaru Nomura¹,
Chiharu Mitsumata³ and Ryoichi Nakatani¹

1 Graduate School of Engineering, Osaka University

2 Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI)/SPring-8

3 National Institute of Materials Research (NIMS)

背景

α - Cr_2O_3 は電気磁気効果を示す材料として知られており、また、Cr スピンが c 面内で強磁的に配列することから、 α - $\text{Cr}_2\text{O}_3(0001)$ は界面磁化 (boundary magnetization) を示す。こうした特徴を有する反強磁性体を用いた交換バイアスは、(1)電気磁気効果による交換バイアスのスイッチングが可能であること、(2)界面磁化が界面ラフネスによって大きく変化しないこと、(3)トレーニング効果を示さないことが予測されている¹⁾が、これらの3つの特性を同時に検討した例はない。特に、(1)については、我々は全薄膜系においてパルス強磁場を用いた交換バイアスの等温反転が可能であることを示しているが²⁾、電気磁気効果による界面反強磁性スピンのスイッチングについては、他グループも含めて成果が出つつある段階にある^{3,4)}。本研究では、電気磁気効果による交換バイアススイッチングを含めて、上記3つの特性について検討した結果について述べる。

実験方法

試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング法を用いた。作製した薄膜の構成は、Pt (1.5 or 5.0 nm)/Co (0.5 or 0.8 nm)/Pt (0 or 0.5 nm)/ α - Cr_2O_3 (120 or 150 nm)/Pt (20 nm)/ α - Al_2O_3 -subs. である。構造評価には、反射高速電子線回折、X 線反射率測定を用い、磁気特性評価には磁気光学 Kerr 効果測定、振動試料型磁力計、軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定、異常ホール効果測定を用いた。XMCD 測定は、SPring-8 BL25SU において行われた。

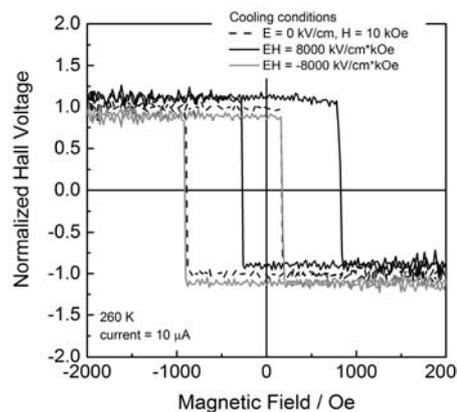
実験結果

Pt 界面層を 0.5 nm 挿入した試料において、電界 E と磁場 H の同時印加による電気磁気冷却 (ME-field cooling) を行うことで、 $EH = 8000 \text{ kV/cm}\cdot\text{kOe}$ において交換バイアスが正方向に発現し、 $EH = -8000 \text{ kV/cm}\cdot\text{kOe}$ では交換バイアスが負方向に発現する。

(右図) すなわち、冷却時の電気磁気効果によって交換バイアスの電界反転が可能であることが分かった。また、Pt 界面層を挿入しない試料では、界面ラフネスと交換結合強度によって XMCD 強度が変化せず、界面非補償反強磁性スピンの界面交換結合強度と界面ラフネスによって変化しない。さらに、同一試料を用いて、交換バイアスのトレーニング効果測定と行った結果、トレーニング効果が表れないことも分かった。当日は、Pt 界面層の挿入による Cr の電子状態の変化、ME-field cooling 条件の最適化についても述べる予定である。

参考文献

1) K.D. Belashchenko, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 147204., 2) Y. Shiratsuchi et al., Appl. Phys. Lett. **100** (2012) 262413., 3) X. He et al., Nature Mater. **9** (2010) 579., 4) T. Ashida et al, Appl. Phys. Lett. **104** (2014) 152409.



冷却条件を変化させた際の AHE 曲線。EH によって交換バイアスが反転している。(電界印加を行った 2 つの曲線は、上下にオフセットさせている。)