

「悪魔の階段」現る ～放射光の高強度軟 X 線が映し出した異常なスピン配列～

1. 発表者：

松田 太一（研究当時：東京大学大学院工学系研究科 修士課程）
津山 智之（研究当時：東京大学大学院工学系研究科 修士課程）
齊藤 高志（京都大学化学研究所 助教）
石渡 晋太郎（東京大学大学院工学系研究科 准教授）
十倉 好紀（東京大学大学院工学系研究科 教授、理化学研究所創発物性科学研究センター
センター長）
和達 大樹（東京大学物性研究所 准教授）

2. ポイント：

- ◆軟 X 線（注 1）を用いてコバルト酸化物における新しい磁気構造「悪魔の階段」（注 2）状態を解明した。
- ◆目に見えないほど小さな物質の磁気構造の詳細を軟 X 線によって決定した画期的な成果である。
- ◆今後、同種の複雑な磁気構造が軟 X 線によって次々と発見されることにより、新しいタイプのスピントロニクス材料の開発などの実用化につながることを期待できる。

3. 概要：

最近の放射光施設における軟 X 線を利用した回折（注 3）測定のみざましい進歩は、薄膜やナノ構造などを含む極小試料におけるスピンの配列（磁気構造）の決定が可能となるなど、物質科学だけでなく、次世代のデバイスとして期待されているスピントロニクスへの応用が期待されています。東京大学物性研究所の和達大樹（わだち ひろき）准教授、同大学院工学系研究科の石渡晋太郎（いしわた しんたろう）准教授、同大学院工学系研究科の十倉好紀（とくら よしのり）教授（理化学研究所創発物性科学研究センター センター長）と京都大学化学研究所の齊藤高志（さいとう たかし）助教らの研究グループは、ドイツの Leibniz Institute for Solid State and Materials Research Dresden と Helmholtz-Zentrum Berlin の研究グループと共同で、巨大磁気抵抗（注 4）を示すコバルト酸化物に対し、ドイツの放射光施設 BESSY II において共鳴軟 X 線回折実験（注 5）を行い、スピン配列の周期として理論的に考え得る全ての状態が存在し、それらが磁場をかけることにより変化する様子を明らかにしました。その磁場とともに何段にも変化する磁気構造の様子は「悪魔の階段」と呼ばれており、コバルトを含む鉄やマンガンなどの遷移金属の物質のスピンでは初めての発見となります。今後、高強度な軟 X 線による回折実験をさらに進めることで、この「悪魔の階段」状態の他の物質における発見や、より空間分解能を上げた「悪魔の階段」状態のミクロな観測などにより、新しいタイプのスピントロニクス材料の開発につながることを期待できます。

この研究成果は、米国科学誌 *Physical Review Letters*（6 月 8 日オンライン）に掲載されます。

4. 発表内容：

(背景)

物質科学においては、電子の性質を活かした新機能を持つ物質の研究が盛んで、特に電子のスピンを自由度を活かしたスピントロニクスが注目を集めています。更にスピントロニクス材料の中でも、磁場により電気抵抗を制御できる巨大磁気抵抗を示す物質はデバイス応用に適しており盛んに研究されています。本研究ではそのうちコバルト酸化物 $\text{SrCo}_6\text{O}_{11}$ に注目しました。この物質では、磁場をかけたときに、同じ方向と逆方向に揃ったスピンの比率が 2 対 1 になる状態が安定になることが、磁化の測定などから予測されていました。磁気構造を決める有用な手段としては、中性子による回折測定がありますが、これらの面白い性質を生み出す物質では、中性子回折測定に必要な大きさの結晶が得られず、その磁気構造は全く明らかになっていませんでした。本研究では、このような微小な結晶でも測定が可能であり、最近の実験技術の進歩により可能となった共鳴軟 X 線回折実験により、磁気構造の完全な決定を目指しました。

(研究内容と成果)

共鳴軟 X 線回折実験はドイツの放射光施設 BESSY II で行いました。測定に用いたコバルト酸化物は、 $0.20 \times 0.20 \times 0.05 \text{ mm}^3$ 程度の非常に小さな正六角形の薄片単結晶試料で、図 1 に示す実験配置による X 線の反射回折パターンを測定しました。図 2 が各温度で測定された X 線回折パターンで、ほとんど全てのスピン配列の周期性に対応する分数値の回折ピークが観測され、各々の温度で様々な周期の磁気秩序が共存している様子が見られます。これは、磁気的な相互作用の正負が距離によって変化するモデルを理論的に解くことで得られる「悪魔の階段」の状態が、実際の物質で実現している事を示しています。「悪魔の階段」では様々な周期の磁気構造が非常に近いエネルギーを持つため、実際の物質ではこれらの磁気周期の構造の共存した状態となります。本研究グループは、さらに磁場をかけての共鳴軟 X 線回折測定によりこれらの分数のピークのふるまいを観測し、図 3 のように磁化の測定で見られたステップを生み出す磁気構造の様子を完全に解明しました。

(本研究の意義、今後の展望)

本研究により「悪魔の階段」を生み出す磁気構造の詳細が明らかになりました。今後、このような「悪魔の階段」型の磁気構造をさらなる系統的な研究により他の物質にも見つけることが本研究グループの目標の 1 つです。単純に磁場により電気抵抗を増減させるだけでなく、電気抵抗や磁化が階段状にとびとびの値をとることを活かした、新しいタイプのスピントロニクス材料の開発などにつなげたいと考えています。

5. 発表雑誌：

雑誌名：Physical Review Letters (6 月 8 日オンライン掲載予定)

論文タイトル：Observation of Devil's Staircase in the Novel Spin Valve System $\text{SrCo}_6\text{O}_{11}$

著者：T. Matsuda, S. Partzsch, T. Tsuyama, E. Schierle, E. Weschke, J. Geck, T. Saito, S. Ishiwata, Y. Tokura, and H. Wadati

6. 用語解説：

注1：軟 X 線

X 線のうちでも比較的波長の長いもの。硬 X 線は原子間距離である 0.1 ナノメートル（1 ナノメートルは 10 億分の 1 メートル）程度より波長が短い領域であるが、軟 X 線は 1 ナノメートル程度と、波長がその 10 倍程度長い。

注2：悪魔の階段

スピン配列の様子が磁場とともに変化するが、その様子を磁化測定によって観測すると、磁場とともに磁化が階段状に増加していく様子を示す。この状態を悪魔の階段と呼び、多くの分数の状態が実現している。

注3：回折

X 線は波の性質を持つため、物質に当てると結晶格子によって折れ曲がり、干渉効果によって強いピーク点が現れる。これは物質中の周期構造の情報を持っている。

注4：巨大磁気抵抗

磁場をかけることにより電気抵抗が変化する性質であり、数倍という変化から何桁も変化する物質まで多岐にわたる。

注5：共鳴軟 X 線回折

ふつうの硬 X 線回折の測定では、注3で述べたように物質中の周期構造の情報が得られる。軟 X 線での回折の測定により、大きな共鳴増大現象を使って、特に磁気構造に敏感な回折測定ができる。

7. 添付資料：

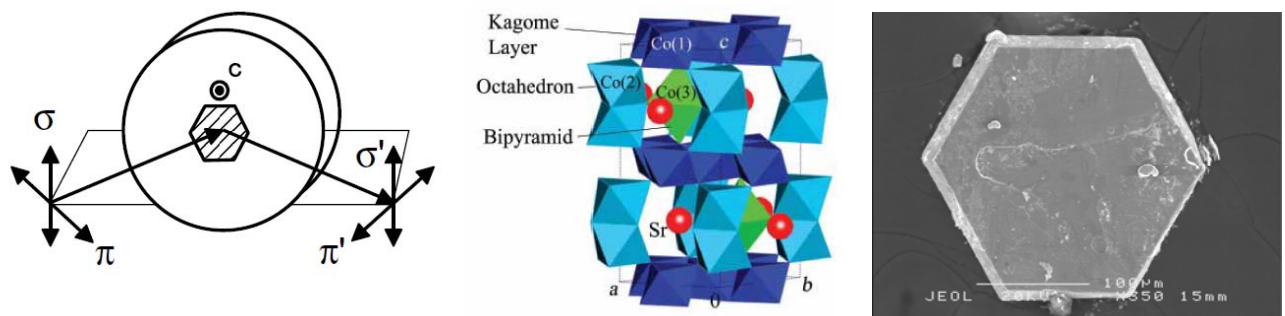


図1：共鳴軟 X 線回折のセットアップ

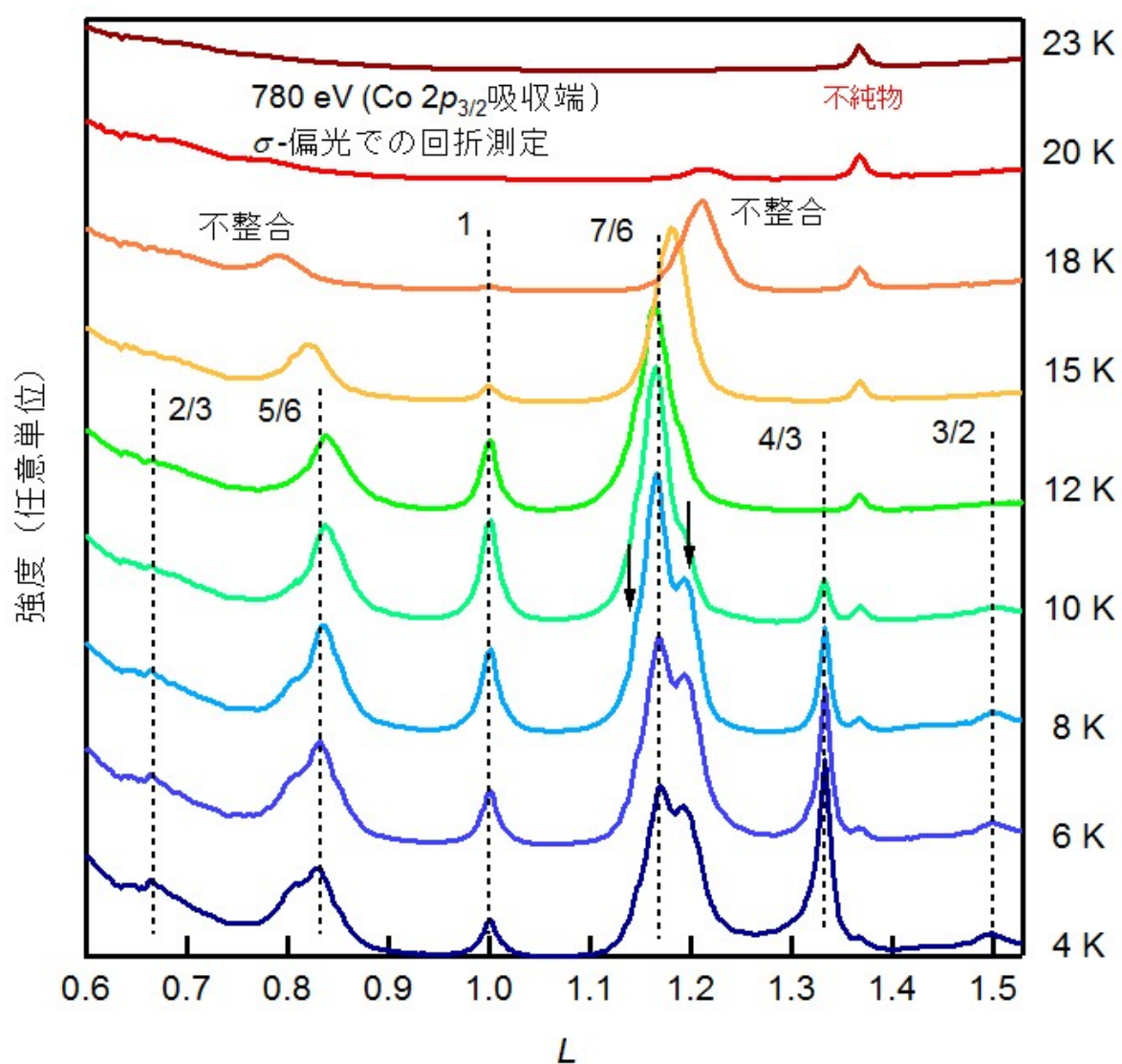


図 2 : 様々な分数のピークが共存する悪魔の階段状態

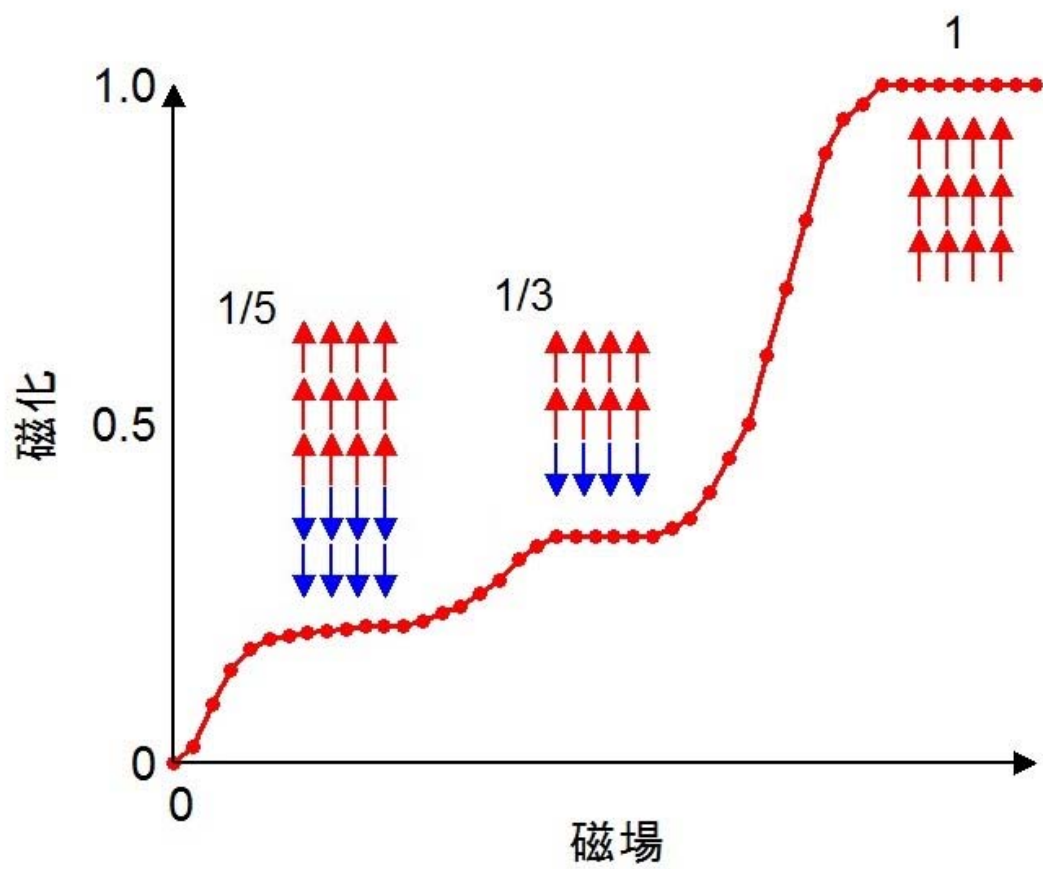


図 3 : 悪魔の階段とそれを生み出す磁気構造