

# 鉄隕石の微細構造と磁性

小 嗣 真 人\* 三 俣 千 春\*\*

## 1. はじめに

鉄隕石(隕鉄)はFeとNiを主成分とし、ウィドマンステッテン構造と呼ばれる特徴的な微細金属組織を示す(図1)<sup>(1)-(9)</sup>. その一方で、鉄隕石は地球上のFeNiとは大きく異なる磁気ヒステリシスや磁気異方性を示すことも知られている<sup>(7)-(10)</sup>. 鉄隕石はこれまで初期太陽系の知見を与える情報源として、地球惑星科学の分野で取り扱われてきた. しかしながら、材料科学の立場から物性に着目した研究は未だ為されていない. そこで、本稿では、鉄隕石を金属磁性材料の一種と位置付けて、その磁気特性の起源を金属組織と関連づけて議論した研究例<sup>(11)</sup>について紹介したい.

## 2. 研究の背景

地球上に降り注がれた隕石の大半は、火星と木星の間に存在する小惑星帯から飛来したものと考えられている<sup>(1)</sup>. 隕石の一種である鉄隕石はFeNiを主成分とする合金で微惑星内核が起源とされる<sup>(2)-(4)</sup>. 内核のFeNiはマントルによって断熱されているため極めて緩やかな徐冷をされる. 相図によるとFeNiは1185 K以下で $\alpha$ 相(bcc-FeNi, 鉱物名: カマサイト)と $\gamma$ 相(fcc-FeNi, 鉱物名: テーナイト)に分岐しており、このような熱環境下で長範囲に亘る偏析が生じた結果、 $\alpha$ 相と $\gamma$ 相が明確に分離され、ウィドマンステッテン構造が形成される(図1)<sup>(1)-(3)</sup>. 従って、ウィドマンステッテン構造は $\alpha$ 相と $\gamma$ 相のFeNi合金の層状結晶(ラメラ)で構成される多結晶体として表現される<sup>(6)</sup>. Niの偏析は金属の拡散係数と熱平衡状態によって決定づけられることから、鉄隕石の冷却速度は100万年に1°C(合計で約46億年)と見積もられている. 本構造は加熱によって破壊される不可逆な構造であり、人工的に作製するのは困難な天然の金属組織である. なお、金属組織としては次の特徴を示すことが知られている.

ウィドマンステッテン構造中の $\alpha$ ラメラと $\gamma$ ラメラは $\{110\}_\alpha // \{111\}_\gamma$ となる方位に配向し、面内方向に関してはNishiyama-Wassermann(NW)オリエンテーションと呼ばれる $\langle 110 \rangle_\alpha // \langle 112 \rangle_\gamma$ かKurdjumov-Sachs(KS)オリエンテーションである $\langle 111 \rangle_\alpha // \langle 110 \rangle_\gamma$ の二通りの界面構造をとることが報告されている<sup>(6)</sup>.  $\alpha$ 相ラメラではbcc-FeNi合金を形成し、組成は均一である. 一方、 $\gamma$ 相ラメラではfcc-FeNi合金を形成し、界面に近接するに従ってNiの濃度が上昇する. 界面の近傍ではインバー、tetraaenite, パーマロイ、Niといった多様なFeNi合金相が積層した構造をとる<sup>(12)-(15)</sup>. したがって、界面近傍の構造は様々なFeNi相で構成された一種の磁性多層膜と解釈する事ができる. このよ

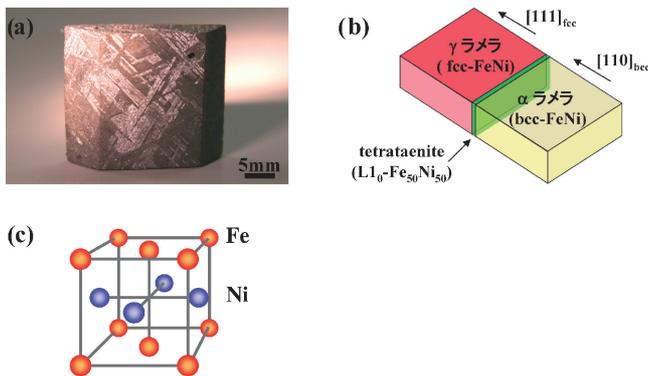


図1 ウィドマンステッテン構造.  
 (a) ウィドマンステッテン構造の微細金属組織.  
 (b) 界面近傍の模式図. tetraaenite相が $\alpha$ 相と $\gamma$ 相の界面に偏析している.  
 (c) tetraaeniteの結晶構造. FeとNiがc軸に沿って交互に積層された、いわゆるL1<sub>0</sub>型の超構造として特徴付けられる.

\* 高輝度光科学研究センター研究員(SPring-8/JASRI) (〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1)

\*\* 日立金属株式会社生産システム研究所主任研究員

Metallographic and Magnetic Properties of Iron Meteorite; Masato Kotsugu\*, Chiharu Mitsumata\*\*(\*Japan Synchrotron Radiation Institute (Spring-8/JASRI), Sayo-gun, Hyogo. \*\*Production System Laboratory, Hitachi Metals, Ltd., Kumagaya)

Keywords: iron meteorite, magnetic domain, photoelectron emission microscopy (PEEM), micromagnetics simulation, tetraaenite

2009年8月28日受理

うに鉄隕石は金属磁性研究に関する多くの研究対象を内包しており、鉄隕石は地球惑星科学のみならず、材料科学や応用にも関連する豊かな研究対象といえる。そこで、我々は鉄隕石の磁気特性をウィドマンステッテン構造と関連づけて議論することを初めて試みた。

上記の FeNi 相の中で、特に, tetraenaite に着目し議論を行った<sup>(16)-(18)</sup>。tetraenaite は鉄隕石中で発見された特殊な FeNi 合金であり、c 軸に沿って Fe 層と Ni 層が単原子層毎に交互に規則的に積層された、いわゆる L1<sub>0</sub> 型の超構造として記述される(図 1(c))。特に、通常の不規則相 FeNi と比較して 2 桁以上高い磁気異方性 ( $K_1 = 3.2 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ ) を示すことが大きな特徴である。Fe, Ni, および通常の FeNi 合金の磁気異方性は、 $4.8 \times 10^4$  (Fe),  $-6 \times 10^3 \text{ J/m}^3$  (Ni),  $5 \times 10^2$  (インバー),  $-2.5 \times 10^3$  (パーマロイ, 規則相) である<sup>(12)-(15)</sup>。また、tetraenaite 薄片の保磁力を SQUID により見積もったところ  $1 \times 10^5 \text{ A/m}$  程度の値が得られている。これは通常の不規則相 FeNi と比較して 4 桁以上高い値に相当する。Fe, Ni および、通常の FeNi 合金の保磁力は数十 A/m 程度あるいはそれ以下であり、したがって FeNi 相は通常軟磁性体に分類される。それに対して tetraenaite は硬磁性体として特徴付けられることがわかる。なお、tetraenaite は中性子照射によって作製できることが Néel によって報告されており<sup>(16)</sup>、また最近では分子線エピタキシーを用いた単原子層毎交互積層による試料作製も展開されている<sup>(17)</sup>。なお tetraenaite は金属学的には  $\gamma'$  相あるいは L1<sub>0</sub> 型 FeNi と表現されるが、現時点では物性の殆どが明らかになっていないことから、本稿では鉱物名である tetraenaite 表記を使用する。

### 3. 実 験

#### (1) 光電子顕微鏡

鉄隕石の金属組織と磁区構造を調査するために、我々は光電子顕微鏡 (PEEM) を活用した<sup>(19)-(31)</sup>。PEEM は光電効果により放出される光電子の空間分布を約 1 万倍に拡大し、数十 nm の空間分解能で直接観察できる電子顕微鏡の一種である。そして、放射光と PEEM を組み合わせる事で、実像観察のみならず、結晶構造や磁区構造に関する知見を同時に得る事ができるため、ナノサイエンスから産業利用にわたって、近年様々な分野での研究が活発に展開されている。

試料に励起光が入射されると、光電効果により真空中に光電子が放出される。放出された光電子は、20 kV 程度に加圧された引き出し電極によって一旦加速され、後段の投影レンズによって位置情報を拡大された後、最終的にスクリーンに投影される。励起光に放射光を用いる際、PEEM アナライザには Fermi 準位から二次電子までの全ての光電子が取り込まれる。非弾性散乱を起こした二次電子が大半を占めるため、得られる情報は光電子収量に相当し、いわゆる X 線吸収量と比例関係を持つ。X 線のエネルギーをスキャンしながら連続的に画像測定を行う事で X-ray absorption fine

structure (XAFS) 解析を測定画像のピクセル毎に行えるため、化学状態を含めた元素分布や局所構造の解析が可能である<sup>(32)</sup>。

光エネルギーを吸収端近傍で走査することにより画素毎の X-ray absorption near-edge structure (XANES) が取得できる。この際、電子は原子内の高いエネルギーの束縛状態、あるいはイオン化準位直上の準連続状態に遷移する。どちらの状態も原子配置やポテンシャルの変化に敏感なため、吸収元素の電子状態やその近傍の局所構造を反映したスペクトルを得る事ができる。また吸収端を大きく超える広範囲のスキャンでは、Extended X-ray absorption fine structure (EXAFS) を画素毎に収録できる。X 線吸収の際に放出された光電子は球面波として記述されるが、隣接する原子によって散乱され、干渉された結果、遷移モーメントが変調されてスペクトルに微細構造が生じる。その微細構造をフーリエ変換することで励起原子近傍の構造に関する情報が得られる。また、励起光に円偏光放射光を用いた実験では、偏光(光スピン)に応じて X 線吸収強度に差異が生じる。例えば、励起光の光スピンの磁気モーメントと平行の配置で X 線の吸収量が増大した場合、磁気モーメントと反平行の配置では吸収量が減少する。このような光磁気効果は磁気円二色性 (MCD) と呼ばれ、これを利用することで元素選択的な磁区構造解析 (XMCD-PEEM) を行なうことができる<sup>(19)-(26)</sup>。

#### (2) 試料作製

本研究で用いる試料として、我々はギベオン鉄隕石(ナミビア共和国ギベオン地方にて、1836年 J. E. Alexander によって発見される。)を選択した<sup>(3)</sup>。ギベオン鉄隕石は明瞭なウィドマンステッテン構造を示す最も代表的な鉄隕石の一つである。 $\alpha$  ラメラの (001)<sub>bcc</sub> 面が観測面となるようダイヤモンドカッターを用いてギベオン鉄隕石塊より  $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$  に切り出した。粒径  $6 \mu\text{m}$  のダイヤモンドスラリーで表面研磨した後、粒径  $1 \mu\text{m}$  でバフ研磨して鏡面に仕上げた。なお原子間力顕微鏡 (AFM) によって見積もられた表面粗さは  $7.37 \text{ nm}$  であり、研磨傷による磁区構造の乱れは無視できる程小さい。また、PEEM 観測は研磨傷の少ない領域で行なわれた。試料の磁気状態は地上に飛来して以来、地磁気や人為的な磁場など様々な磁場により汚染を受けている<sup>(2)(3)</sup>。それらの残留磁化をキャンセルするため、測定に先立って試料の消磁を行なった。 $875.6 \text{ kA/m}$  から 0 まで減衰する交流磁場を試料面内方向(図 2 および図 3 の縦方向に相当する)に印加した後、試料面垂直方向にも印加して消磁を行なった。

我々は ELMITEC 社製 PEEM SPECTOR を SPring-8 の 2 つのビームライン BL39XU<sup>(32)-(35)</sup> と BL25SU<sup>(36)(37)</sup> に接続して画像測定を行った。硬 X 線ビームラインである BL39XU において局所構造解析を行い、軟 X 線ビームラインである BL25SU において磁区構造の測定を行なった。PEEM SPECTOR の到達分解能は  $35 \text{ nm}$  であり、視野径  $50 \mu\text{m}$  における 1 ピクセルは  $100 \text{ nm}$  に相当する。XAFS 測定における画像一枚あたり露光時間は約 10 秒とし、Fe の K

吸収端である6.90から7.80 keVの領域で合計421枚の画像を取得した。またNiのK吸収端においても同様に、8.12から9.02 keVの領域で連続的に画像測定を行なった。組成比の規格化はNiとFeのK吸収端の立ち上がりの高さから定性値を算出し、電子線プローブマイクロアナライザ(EPMA)を用いて検量し、定量値に校正した。MCD-PEEMによる磁区構造測定はFeのL<sub>3</sub>吸収端(708.4 eV)を用いて行なわれた。キッカーマグネットを用いた1 Hzの高速偏光スイッチングモードを活用し、一枚当たり20分の露光時間で明瞭な磁区像を得る事ができた<sup>(37)</sup>。

## 4. 結果と議論

### (1) 組成マッピング

図2(a)に走査型電子顕微鏡によるウィドマンステッテン構造の金属組織を示す。幅4 μmの細いγラメラと幅40 μmの太いγラメラがαラメラによって隔てられていることが確認できる。図中の丸で示されたα/γ界面領域に着目してPEEM測定を行なった。得られたNiの空間分布を図2(b), (c)に示す。明るい領域ほどNiが高濃度であることを示す。S/Nを向上させるため露光時間10秒の測定画像を30枚積算している。αラメラ中のNi組成は均一(Ni=6.6 at%)であった。また、細いγラメラ中では約28 at%を示した(図2(b))。その一方で太いγラメラにおいてNi組成比は連続的に分布しており、界面に近づくに従って濃度が急激に上昇する振る舞いが確認された(図2(c))。これはウィドマンステッテン構造の典型的な特徴に一致しており、界面近傍で高濃度のNiが偏析していることが示唆される。

### (2) XAFSによる構造解析

局所結晶構造を議論するため、細いγラメラ周辺で行なわれたNi K吸収端のXANES測定結果を図2(d)に示す。各XANESスペクトルは図2(b)におけるγラメラとαラメラそれぞれの積分強度を入射光のエネルギーに対してプロットしたものである。矢印に示されるとおり、Ni K吸収端のピーク構造はαラメラにおいては一本であったのに対して、γラメラでは二本であることが確認できる。様々な組成のFeNi合金に対するXANES測定では、同様の一本から二本へのピーク分離がNi25 at%-Feを境界として確認されており、これはbccからfccへの構造相転移によるものである事が報告されている<sup>(38)</sup>。従って、αラメラではbcc構造、γラメラではfcc構造を取ることが示唆される。この振る舞いはFeのK吸収端においても同様に確認された。

次に、α/γ境界近傍における構造の変化の詳細を議論するため、空間分解EXAFS測定を画素単位で行なった。この領域のγラメラにおいてはFeNi合金のbcc-fcc相転移点である25 at%を横断する形でNi組成が上昇している。図2(c)において任意のNi組成を持つ画素を選択し、該当するピクセルのX線吸収強度を積分しXAFSスペクトルを抽出した(図2(e))。γラメラにおけるNi組成がそれぞれ20

at%以下、 $22.5 \pm 1.25$ ,  $25 \pm 1.25$ ,  $27.5 \pm 1.25$ ,  $30 \pm 1.25$ ,  $32.5 \pm 1.25$ , 35以上の領域とαラメラの全領域(約5 at%Ni-Fe)をそれぞれ選択し、Ni K端の吸収強度を積分した。EXAFS解析によって得られた動径分布関数を図2(e)に示す。標準試料として厚さ5 μmの純Fe箔を用いたEXAFS測定結果と比較した。動径分布関数はNi組成比に依存して連続的に変化した。fccとbcc構造における第一近接原子間距離は0.2485 nmと0.2489 nmとほぼ等しいことから、第2近接以遠に着目して構造を比較した。20 at%において動径分布関数は約0.34と0.44 nm付近に明確な二本のピークが観測され、bccであるFe箔と良い一致を示した。Ni組成比の上昇に従って第3近接原子間距離に相当するピークが連続的に短距離側(約0.42 nm)にシフトした。35 at%においてはfcc相のFeNiに良い一致を示す構造が確認された<sup>(39)(40)</sup>。この振る舞いはXANESの結果と一致するものであった。また同様の振る舞いは先述の細いγラメラにおいても確認している。従って、ウィドマンステッテン構造においては、αラメラは組成が均一でbcc構造をとり、γラメラでは界面に近づくに従ってNiが偏析し、Ni組成比の上昇に伴ってbccからfcc構造へと相転移すること、を直接確認することができた。

### (3) MCD-PEEMによる磁区構造解析

次に、MCD-PEEMを用いて同じ領域の磁区構造観察を行った(図3(a), (b))。光の入射方向は、矢印に示されるとおり、界面に対して直交する配置に設定した。これは $[110]_{\text{bcc}}$ 方向に相当する(図3(a), (b))。なお、赤から青にかけてのカラースケールはMCD強度を示す。図3(a)に示されるとおり、界面から6 μm, 12 μm離れた場所において、界面と平行な横向き縞状磁区が確認された。ウィスカーなどに代表されるbcc-Feにおいては、通常は幅の広い長方形の磁区構造を示すことが知られているが、今回得られた縞状の磁区はこれと異なる振る舞いであった。縞状磁区は界面と平行に配置されていることから、その起源の一つとして界面に関連することが予想される。

次にα/γ界面近傍に着目すると、幅約2 μm程度の微細な磁区構造が確認できる。図3(b)の矢印で示されるとおり、磁化方向は界面を挟んで $[110]_{\text{bcc}}$ 方向に平行、あるいは反平行な向きを持つ。つまり界面に対して直交し、互いに反対方向の磁化をもつ“head-on”構造となることが確認できる。この磁区構造は反磁場による静磁エネルギーの損失が大きく、大変奇妙で通常では期待できない磁区構造である。なお、この磁区構造は界面近傍のいたる所において観測されている(図3(a), (b))。通常の180°磁壁では、静磁エネルギーの損失を抑えるために磁化は界面に対して平行に向く<sup>(41)</sup>。また、多結晶FeNiの粒界近傍においては磁化は互いに同じ方向を向く<sup>(42)(43)</sup>。ほぼ理想的なFe/Ni界面として、Ni(111)上にエピタキシャル成長させたFe薄膜においては、Feの磁化はNiに対して、平行か直交な配向となり、界面では一般的な180°磁区あるいは90°磁区が形成される。90°磁

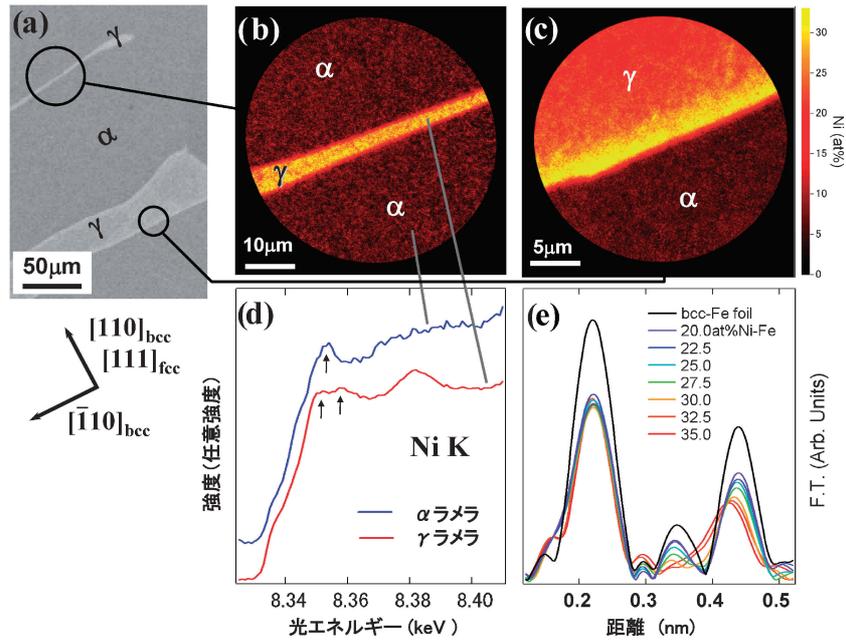


図2 ウィドマンステッテン構造における組成と構造。

- (a) 走査型電子顕微鏡像。
- (b) 細い $\gamma$ ラメラ近傍におけるNi組成マッピング。
- (c) 太い $\gamma$ ラメラ近傍におけるNi組成マッピング。界面近傍でNiの偏析が確認された。
- (d) 図2(b)における空間分解XANESスペクトルをNi K吸収端を用いてプロットしたもの。
- (e) 図2(c)において空間分解EXAFS測定を行ない、動径分布関数を $\gamma$ ラメラ中のNi組成に対してプロットしたもの。

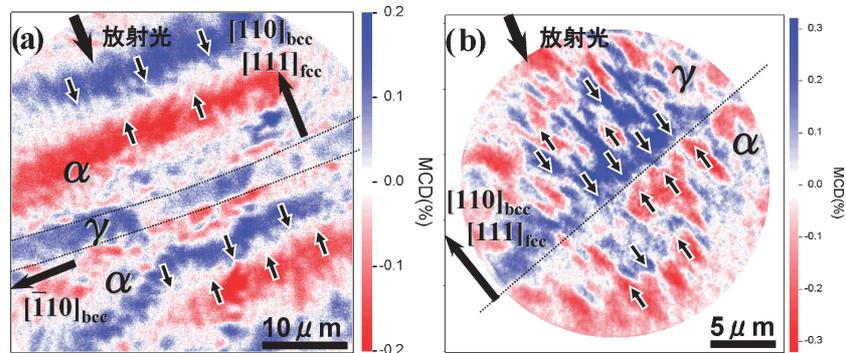


図3 図2(b), (c)と同じ領域における磁区構造。

- (a)  $\gamma$ ラメラと平行な横長のストライプ磁区構造が確認された。
- (b) 界面近傍ではhead-on構造を持つ磁区構造が確認された。界面を境界にして互いに向き合う磁区構造であった。

区の原因は結晶磁気異方性による磁化容易方向の違いが主な原因である<sup>(44)-(47)</sup>。従ってhead-on構造の原因は界面ミスマッチや格子緩和によるものとは考えにくい。PEEMは表面敏感な観測手法であるため、表面粗さに関する検討も行った。AFMで見積もられた表面粗さは7.37 nmであり、最も凹凸の大きい研磨傷においては深さ10 nm、幅100 nmであった。後述の数値計算において、このようなラフネスの効果を考慮に入れて計算を行ったが、head-on磁区を再現するには至らなかった。加えて、様々な方向について表面の傷は今回の縞状磁区やhead-on磁区のような、決まった方位に配置された磁区の原因になることは考えにくく、表面粗さの効

果は無視できる程小さい。従って、今回観測された縞状磁区とhead-on磁区構造は通常のFeNiに見られる磁区構造とは全く異なる振る舞いであり、鉄隕石特有のユニークな磁区構造であると結論づけられる。

#### (4) マイクロマグネティクスシミュレーションによる磁区構造の検証

観測された磁区構造を理解するため、我々はマイクロマグネティクスシミュレーションによる検討を行なった。理論計算はランダウ・リフシッツ・ギルバート(LLG)方程式を解く事で実施した。計算は3次元モデルに特殊な境界条件を

導入し、単純な Fe/Ni 界面(図 4(a)), と Fe/tetrataenite/Ni(図 4(b))の二種類のモデルについて行われた<sup>(48)(49)</sup>. 計算に用いられた境界条件は,  $x$  方向については無限遠への連続境界条件,  $y$  方向は周期境界条件,  $z$  の正方向へは自由境界条件,  $z$  の負方向は無限遠への連続境界条件とする特殊境界条件を導入した. 界面近傍の磁区構造を議論するため,  $1.6 \times 6.4 \times 1.6 \mu\text{m}^3$  の領域を  $100 \text{ nm}$  のグリッドサイズで計算を実施した. 最表面が PEEM で観測された実験結果に対応する. なお今回は簡単な為, Ni の組成は均一とした. 計算に用いた磁気モーメントはそれぞれ  $2.2$  (Fe),  $1.33$  (tetrataenite),  $0.6\mu_B$  (Ni)とした. Fe と Ni は文献値より, tetrataenite については SQUID で見積った値を利用した. また, 交換スティフネス定数はそれぞれ,  $1.3 \times 10^{-11}$  (Fe),  $1.0 \times 10^{-11}$  (tetrataenite),  $0.8 \times 10^{-11} \text{ J/m}$  (Ni)とした. 磁気異方性エネルギーはそれぞれ上述の  $4.8 \times 10^4$  (Fe),  $3.2 \times 10^5$  (tetrataenite),  $-6 \times 10^3 \text{ J/m}^3$  (Ni)を用いた. 磁化分布の計算では無磁場条件下においてランダム配置から平衡状態に収束するまで行うことで消磁効果を取り入れた. 計算は様々な tetrataenite 膜厚  $1.4, 1.2, 1.0, 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 \mu\text{m}$  について実施され, また NW と KS 配置の両者について行なわれた. ここでは厚さ  $1 \mu\text{m}$  の tetrataenite の NW 配置における計算結果を代表例として用いて議論を進める.

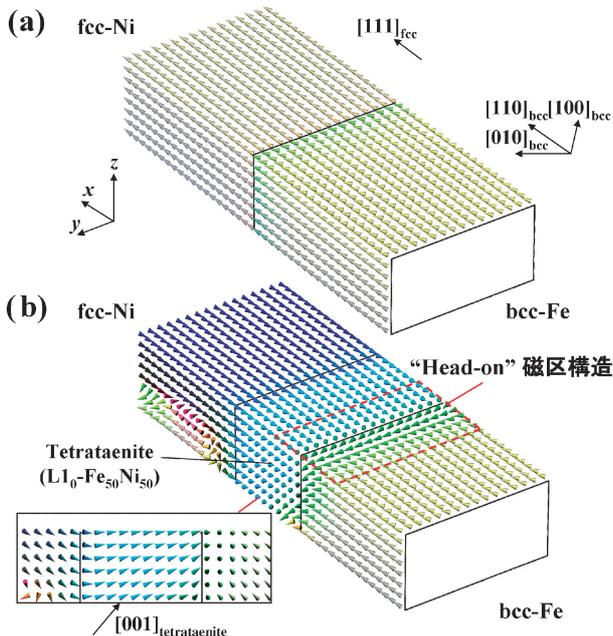


図 4 ウィドマンステッテン構造のモデル界面におけるマイクロマグネティクスシミュレーション結果 (グリッドサイズ  $100 \text{ nm}$ ).

- (a) Fe/Ni 界面に対する磁区構造.  
 (b) Fe / tetrataenite / Ni における磁区構造. tetrataenite は周囲の軟磁性 Fe や Ni と比較して飛躍的に高い磁気異方性を持つため, tetrataenite は軟磁性体で挟まれた永久磁石のように振る舞う. 軟磁性体である周囲の Fe, Ni の磁化は tetrataenite によって容易に影響され, 最終的に head-on 構造を形成する.

図 4(a)に示されるように, 単純な Fe/Ni 界面においては, 磁区構造は単純な形状となり, head-on 構造は形成されない. Fe や Ni の殆どの領域で, 磁化はバルクの容易磁化軸である  $\langle 100 \rangle_{\text{bcc}}$  あるいは  $\langle 111 \rangle_{\text{fcc}}$  を向いており, 界面に接近するに従って徐々に傾き, 界面で通常の  $90^\circ$  磁区を形成する. その一方で, Fe/tetrataenite/Ni においては磁区は大きく変化し, 明確に head-on ドメインの形成が確認できる(図 4(b)). 磁区構造はそもそも全エネルギーが最小になるように形成される. tetrataenite の結晶磁気異方性は周囲の Fe および Ni と比較して飛躍的に高く, tetrataenite の磁化の向きを cant させるには高いエネルギーを必要とする. したがって, tetrataenite の露出した表面近傍では  $z$  方向に働く磁極が生じ, 静磁エネルギーが増加する. 一方, 軟磁性体である Fe および Ni の結晶磁気異方性は小さいので, 界面近傍では tetrataenite 近傍で増加した静磁エネルギーを打ち消し, かつ交換エネルギーの増加がなるべく少なくなる磁化分布となる. 表面磁極による静磁エネルギーを小さくするためには, 何処かに逆極性の磁極が生じる必要があるが, Ni 側の磁化が反転したほうが Fe 側の磁化が反転するよりも交換エネルギーの増加が小さいため, 図 4(b)のインセットのような構造となる. 以上は  $z$  方向の磁極に関する議論であるが,  $x$  方向についても考えると磁化の大きさが tetrataenite  $>$  Ni であるから, 界面では磁化の  $x$  成分が不連続となり磁極が生じる. この磁極の影響をキャンセルするためには反対の極

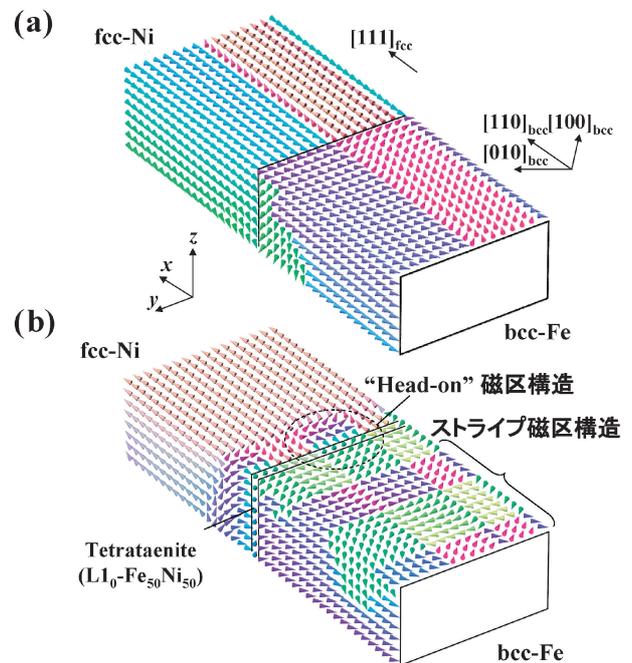


図 5 ウィドマンステッテン構造のモデル界面におけるマイクロマグネティクスシミュレーション結果 (グリッドサイズ  $1 \mu\text{m}$ ).

- (a) Fe/Ni 界面に対する磁区構造.  
 (b) Fe/tetrataenite/Ni における磁区構造. 図 4(b)と同様に, head-on ドメインが形成された. そして界面より離れた領域においてストライプ磁区構造が確認された.

性をもつ磁極が生じる必要があり、tetratanite と Fe の界面に逆極性の磁極を生じさせる磁化分を形成する。この分布は head-on の原因となるが、交換エネルギーを比較すると、180°磁壁でも head-on でも同じ大きさになるので、静磁エネルギーを低下させるためには head-on が好ましい。以上の理由により、head-on および stripe 磁区構造が系のエネルギーを最小にする磁区構造として導出された。なお、この磁区構造はいずれの tetrataenite 膜厚においても共通して再現され、NW と KS 配置の両方で確認されている。

概念的には、磁気異方性が大きな tetrataenite は永久磁石として振舞うため、系は永久磁石に軟磁性材料の磁路が接合された磁気回路であり、単純には永久磁石のまわりに磁束が還流する構造を取って静磁エネルギーを減少させると考えられる。一方、本研究の試料のように、界面においても交換結合が顕著である単結晶の積層では、磁束と磁化の方向が異なった分布を示すことで静磁エネルギーと交換エネルギーを同時に減少させるので、積層界面では複雑な磁区構造が形成されたと考えられる。しかし、試料表面に磁極が生じるような磁気回路において、磁束の還流構造と head-on 磁区構造は静磁エネルギーを減少させる目的として矛盾しない分布であることから、head-on 磁区構造が tetrataenite の析出によって形成されたと考え無理のない帰結であろう。

また、広範囲の領域における磁区構造を検証するため、 $16 \times 72 \times 8 \mu\text{m}^3$  で  $1 \mu\text{m}$  グリッドを用いて計算を行った。単純な Fe/Ni 界面と Fe/tetrataenite/Ni 界面に二種類のモデルについて行なった。tetrataenite 膜厚はそれぞれ 1, 2, 3, 4  $\mu\text{m}$  に対し、NW と KS の両方について計算を行なった。100 nm グリッドの結果と同様に、厚さ  $1 \mu\text{m}$  の tetrataenite の NW 配置における計算結果を代表例として図 5 に示す。その結果、Fe/Ni においては単純な磁区構造となり、head-on 構造は形成されなかった。その一方、Fe/tetrataenite/Ni においては、磁区構造は大きく変化し、head-on 構造が確認された。head-on 形成は先述のメカニズムと同様である。そして、界面より離れた領域でストライプ状の磁区構造を確認できた。ストライプ磁区構造は head-on により生じる静磁エネルギーをキャンセルするために形成されるものと考えられる。head-on、及び、ストライプ磁区構造はいずれの膜厚において、また NW と KS の両方の配向において共通して観測された。従って、PEEM で観測された磁区は鉄隕石に特有な磁区構造であり、界面に偏析した tetrataenite の高い磁気異方性に起因して形成された磁区であると結論づけることができる。ウィドマンステッテン構造において、tetrataenite 相は  $\alpha/\gamma$  界面の至る所に偏析しており、 $\alpha$  と  $\gamma$  相は決まった配向性で配置されていることから、tetrataenite の磁気特性は鉄隕石の磁気異方性において重要な役割を果たしていることが示唆される。

## 5. まとめと今後の展望

我々はウィドマンステッテン構造を示す鉄隕石を金属材料

の一つとして位置付け、その磁気特性を金属組織と関連づけて議論を行なった。放射光を用いた PEEM 測定により、組成、局所結晶構造、磁区構造をナノスケールの空間分解能で直接観測した。ギベオン鉄隕石中の組織界面近傍に着目し測定を行なった結果、界面に接近するに従って Ni が偏析し、その濃度に応じて bcc-fcc 構造相転移することを直接確認した。MCD-PEEM 測定により、 $\alpha/\gamma$  界面を境界にして互いに正対する head-on 磁区構造が観測された。この磁区構造は静磁エネルギーの損失が大きく通常の Fe/Ni 界面では期待できない新奇な磁区構造であった。マイクロマグネティックシミュレーションの結果、tetrataenite の高い磁気異方性に起因して head-on 磁区構造が形成されることが示唆された。

最後に、tetrataenite 相の磁気特性に着目したアプリケーションへの活用に関する試みを紹介したい。先述のとおり、tetrataenite は通常の不規則相 FeNi に比べ、高い結晶磁気異方性を示すこと、また構成元素である Fe と Ni は安価で資源が潤沢であることから、環境に優しい磁性材料としてアプリケーションへの期待も持たれる。現在、分子線エピタキシー(MBE)を用いて Fe と Ni を単原子層毎に交互蒸着させることで人工的な tetrataenite の創製が行なわれている<sup>(17)</sup>。Tetrataenite ( $L1_0$  型 FeNi)の磁化容易軸である c 軸を膜面垂直に配向させれば、垂直磁化膜となることが期待され、磁気記録媒体や磁気メモリ、スピントロニクスにおける高効率スピントロニクス源としての可能性があり、今後の応用研究への期待が持たれる。

本研究を実施するにあたって、ご指導やご助言をくださった、高輝度光科学研究センターの脇田高德研究員、鈴木基寛主幹研究員、河村直己副主幹研究員、渡辺義夫副部門長、広島大学の圓山裕教授、石松直樹助教、生天目博文教授、谷口雅樹教授、東京大学の谷内敏之さん、尾嶋正治教授、高エネルギー加速器研究機構の小野寛太准教授各氏に厚く感謝申し上げます。実験は SPring-8 利用研究課題 2004B0738-NXa-np と SPring-8 重点ナノテクノロジー支援課題 2004A0371-NSc-np-Na によって行われた。国立極地研究所の船木實准教授には鉄隕石の研究を始めるにあたって有意義な議論をさせて頂きました。SEM 及び EPMA 測定は広島大学自然科学研究支援開発センター(N-BARD)の柴田恭宏氏にご協力いただきました。米アリゾナ州立大学の E. Bauer 氏のアドバイスは本研究を始めるに当たって心強い励ましとなりました。そして、磁区形成に関する議論や、人工創成された Tetrataenite に関して、東北大学金属材料研究所の高梨弘毅教授よりご指導・ご助言をいただきました。この場を借りて厚く御礼申し上げます。

## 文 献

- (1) F. Heide and F. Wlotzka, Meteorites: Messengers from space, Springer (1995).
- (2) 国立極地研究所編：南極の科学 6, 南極隕石, 古今書院,

- (1987).
- (3) Handbook of Iron Meteorites, V. F. Buckwald, Univ of California, (1975).
  - (4) C.-Y. Yang, D. B. Williams and J. I. Goldstein: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **61**(1997), 2943.
  - (5) J. L. Kirschvink, A. T. Maine and V. Hojatollah: *Science*, **275** (1997), 1629.
  - (6) H. J. Bunge, W. Weiss, H. Klein, L. Wcislak, U. Garbe and R. Schneider: *J. Appl. Cryst.*, **36**(2003), 137.
  - (7) T. Nagata and M. Funaki: *Mem. Natl. Inst. Polar. Res.*, **46** (1987), 245.
  - (8) M. Funaki, I. Tunyi, O. Orlicky and V. Porubcan: *Antarctic Meteorite Research*, **13**(2000), 78.
  - (9) M. Funaki, M. Koshita and H. Nagai: *Antarctic Meteorite Res.*, **16**(2003), 220.
  - (10) P. Wasilewski: *Phys. Earth Planet. Inter.*, **52**(1988), 150.
  - (11) M. Kotsugi, C. Mitsumata, H. Maruyama, T. Wakita, T. Taniuchi, K. Ono, M. Suzuki, N. Kawamura, N. Ishimatsu, M. Oshima, Y. Watanabe and M. Taniguchi: *Appl. Phys. Express*, **3**(2010), 013001
  - (12) 磁性体ハンドブック：近角聡信, 太田恵造, 安達健五, 津屋昇, 石川義和編集, (朝倉書店, 1975), pp. 324-327, 360, 364, 782.
  - (13) S. Chikazumi: *Physics of Magnetism*, R. E. Krieger, New York, (1964), pp. 145, 260-264, 359-396, 494-497.
  - (14) H. P. J. Wijn: *Magnetic Properties of Metals*, Springer-Verlag, Berlin, (1991).
  - (15) C. E. Guillaume: *C. R. Acad. Sci., Paris*, **124**(1897), 176.
  - (16) L. Neel, J. Pauleve, R. Pauthernet, J. Langier and D. Dautreppe: *J. Appl. Phys.*, **35**(1964), 873.
  - (17) T. Shima, M. Okamura, S. Mitani and K. Takanashi: *J. of Magn. Magn. Mater.*, **310**(2007), 2213.
  - (18) M.-Z. Dang and D. G. Rancourt: *Phys. Rev. B*, **53**(1996), 2291.
  - (19) F. U. Hillebrecht, H. Ohldag, N. B. Weber, C. Bethke, U. Mick, M. Weiss and J. Bhardt: *Phys. Rev. Lett.*, **86**(2001), 3419.
  - (20) H. Ohldag, T. J. Regan, J. Shöhr, A. Scholl, F. Nolting, J. Lüning, C. Stamm, S. Anders and R. L. White: *Phys. Rev. Lett.*, **87**(2001), 247201.
  - (21) S-B. Choe, Y. Acremann, A. Scholl, A. Bauer, A. Doran, J. Stöhr and H. A. Padmore: *Science*, **304**(2004), 420.
  - (22) W. Kuch, L. I. Chelaru, F. Offi, J. Wang, M. Kotsugi and J. Kirschner: *Phys. Rev. Lett.*, **92**(2004), 17201.
  - (23) M. Kotsugi, W. Kuch, F. Offi, L. I. Chelaru and J. Kirschner: *Rev. Sci. Instrum.*, **74**(2003), 2754.
  - (24) F. Nolting, A. Scholl, J. Stöhr, J. W. Seo, J. Forpeyrine, H. Siegwart, J.-P. Locquet, S. Lüning, E. E. Fullerton, M. F. Toney, M. R. Scheinfein and H. A. Padmore: *Nature*, **405** (2000), 767.
  - (25) T. Taniuchi, M. Oshima, H. Akinaga and K. Ono: *J. Appl. Phys.*, **97**(2005), 10J904.
  - (26) K. Ono, T. Kinoshita and M. Oshima : *表面科学*, **23**(2002), 300.
  - (27) M. Kotsugi, T. Wakita, N. Kawamura, T. Taniuchi, K. Ono, M. Suzuki, M. Oshima, N. Ishimatsu, M. Taniguchi and H. Maruyama: *Surf. Sci.*, **601**(2007), 4764.
  - (28) M. Kotsugi, F. Guo, M. Taniguchi, N. Ishimatsu and H. Maruyama: *Surf. Sci.*, **601**(2007), 4326.
  - (29) M. Kotsugi, T. Wakita, T. Taniuchi, K. Ono, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Takagaki, M. Taniguchi, K. Kobayashi, M. Oshima, N. Ishimatsu and Maruyama: *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.*, **4**(2006), 490.
  - (30) W. Kuch, L. I. Chelaru, F. Offi, J. Wang, M. Kotsugi and J. Kirschner: *Nat. Mater.*, **5**(2006), 128.
  - (31) J. Stöhr, H. A. Padmore, S. Anders, T. Stammler and M. R. Scheinfein: *Surf. Rev. Lett.*, **5**(1998), 1297.
  - (32) T. Wakita, T. Taniuchi, K. Ono, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Takagaki, H. Miyagawa, F. Guo, T. Nakamura, T. Muro, H. Akinaga, T. Yokoya, M. Oshima and K. Kobayashi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**(2006), 1886.
  - (33) K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa and Y. Mori: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**(2003), 7129.
  - (34) H. Mimura, S. Matsuyama, H. Yumoto, H. Hara, K. Yamamura, Y. Sano, M. Shibahara, K. Endo, Y. Mori, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44**(2005), L539.
  - (35) H. Maruyama, M. Suzuki, N. Kawamura, M. Ito, E. Arakawa, J. Kokubun, K. Hirano, K. Horie, S. Uemura, K. Hagiwara, M. Mizumaki, S. Goto, H. Kitamura, K. Namikawae and T. Ishikawa: *J. Synchrotron Rad.*, **6**(1999), 1133.
  - (36) Y. Saitoh, H. Kimura, Y. Suzuki, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Muro, T. Miyahara, F. Fujisawa, K. Soda, S. Ueda, H. Harada, M. Kotsugi, A. Sekiyama and S. Suga: *Rev. Sci. Instrum.*, **71**(2000), 3254.
  - (37) T. Muro, Y. Saitoh, H. Kimura, T. Matsushita, T. Nakatani, M. Takeuchi, T. Hirono, T. Kudo, T. Nakamura, T. Wakita, K. Kobayashi, T. Hara, K. Shirasawa and H. Kitamura: *AIP Conference Proceedings*, **705**(2004), 1051.
  - (38) H. Sakurai, F. Itoh, H. Maruyama, A. Koizumi, K. Kobayashi, H. Yamazaki, Y. Tanji and H. Kawata: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **62** (1993), 495.
  - (39) S. Cherifi, C. Boeglin, S. Stanescu, J. P. Deville, C. Mocuta, H. Magnan, P. Le Fevre, P. Ohresser and N. B. Brookers: *Phys. Rev. B*, **64**(2001), 184405.
  - (40) P. Le Fevre, H. Magnan and D. Chandesris: *Surf. Sci.*, **352-354** (1996), 923.
  - (41) A. Hubert and R. Schafer: *Magnetic domains*, Springer-Verlag Berlin, (2000).
  - (42) A. Hirohata and H. Miyajima: *J. Appl. Phys.*, **81**(1997), 5665.
  - (43) L. Wang, Z. Fan and D. E. Laughlin: *Scripta Materialia*, **47** (2001), 781.
  - (44) G. C. Gazzadi, F. Bruno, R. Capelli, L. Pasquali and S. Nannarone: *Phys. Rev. B*, **65**(2002), 205417.
  - (45) H. Hoche and H.-J. Elmers: *J. of Magn. Magn. Mater.*, **191** (1999), 313.
  - (46) S. D'Addato, L. Pasquali, G. C. Gassadi, R. Verucchi, R. Capelli and S. Nannarone: *Surf. Sci.*, **454-456**(2000), 692.
  - (47) D. Sander, A. Enders, C. Schmidhals, J. Kirschner, H. L. Johnson, C. S. Arnold and D. Venus: *J. Appl. Phys.*, **81**(1997), 4702.
  - (48) C. Mitsumata, A. Sakuma, K. Fukamichi, T. Tsunoda and M. Takahashi: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**(2008), 044602.
  - (49) C. Mitsumata and S. Tomita: *Appl. Phys. Lett.*, **91**(2007), 223104.
- ★★
- 小嗣真人  
2001年 大阪大学大学院基礎工学研究科博士課程修了  
2001-2003 マックスプランク微細構造物理研究所 博士研究員  
2003-2007 広島大学放射光科学研究センター 講師(研究機関研究員)  
2007年 財団法人高輝度光科学研究センター(SPring-8/JASRI) 研究員  
現在に至る。  
専門分野：ナノ磁性薄膜、光電子顕微鏡をはじめとする放射光分析科学に従事。現在は限石の磁性を通じて新しい磁気デバイスへの利用を展開している。
- ★★



小嗣真人



三俣千春